



UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI NAPOLI

FEDERICO II

DOTTORATO IN FISICA FONDAMENTALE ED APPLICATA

XVIII CICLO

Dott.ssa Benedicta Normanna Limata

**L'impiantazione ionica
nella ricerca di base ed applicata**

**Il Coordinatore
Prof. Arturo Tagliacozzo**

a Fabio

Indice

Introduzione	i
1 L'impiantazione ionica	1
1.1 La tecnica	2
1.2 La fisica dell'impiantazione	5
1.2.1 Perdita di energia nucleare	7
1.2.2 Perdita di energia elettronica	13
1.3 Il danneggiamento	18
1.3.1 Il danneggiamento primario	19
1.3.2 Le reazioni chimiche tra i difetti	22
1.3.3 L'evoluzione termica dei difetti	25
2 Studio del danneggiamento nei semiconduttori	27
2.1 La misura "elettrica" del danneggiamento	28
2.2 La tecnica sperimentale	33
2.2.1 La linea di impiantazione nei semiconduttori	33
2.2.2 La tecnica di misura del lifetime	36
2.3 Ottimizzazione della misura	42
2.4 Risultati sperimentali	50
2.4.1 Applicazione ai diodi di potenza.	56
2.5 Prospettive	58

3	L'impiantazione di fasci radioattivi	63
3.1	La tecnica di impiantazione di ^7Be	64
3.1.1	Il degradatore gassoso	67
3.2	Realizzazione del fascio radioattivo di ^7Be	68
3.2.1	Produzione di un fascio di ^7Be presso l'acceleratore CIRCE . .	71
3.3	La misura dell'usura meccanica	73
3.4	Una misura preliminare: la vita media del ^7Be nei metalli	77
4	Cattura elettronica del ^7Be in ambiente metallico ed electron screening	85
4.1	Electron screening nei metalli nella reazione $d(d,p)t$	86
4.2	La vita media del ^7Be nei metalli come test della validità del modello di Debye	90
4.3	Lo screening nel modello di Debye	93
4.3.1	La cattura dal continuo	95
4.3.2	La cattura di elettroni legati	96
4.3.3	La cattura totale e gli effetti di screening	97
4.4	La cattura elettronica del ^7Be in un gas di fermioni	102
4.4.1	Gas di fermioni non interagenti	102
4.4.2	Lo screening di Thomas-Fermi	103
4.5	Analisi e prospettive	110
	Conclusioni	115
	Appendice A	117
	Bibliography	121
	Ringraziamenti	125

Introduzione

L'impiantazione ionica consiste nel bombardamento di un materiale allo stato solido con ioni accelerati, allo scopo di produrre una modifica della struttura o della composizione del materiale, o di entrambi. Storicamente questa tecnica è nata in seguito alla disponibilità di acceleratori e sorgenti ioniche sviluppati nel campo della ricerca di base in fisica nucleare. Da allora essa è stata applicata in un numero crescente di campi, sebbene alcuni aspetti fondamentali dei fenomeni fisici che intervengono nell'impiantazione ionica non siano tuttora compresi a fondo. In particolare, la descrizione dell'accoppiamento tra variabili elettroniche e nucleari, che è alla base dell'interazione tra uno ione energetico e la materia, non è sufficientemente dettagliata da descrivere in modo accurato la perdita di energia degli ioni nella materia e il danneggiamento strutturale che ne consegue. Inoltre, recenti misure di sezioni d'urto di fusione nucleare a bassa energia hanno evidenziato anomali potenziali di *screening* elettronico in ambiente metallico.

Il presente lavoro di tesi si propone di fornire un contributo alla comprensione di questi aspetti dell'impiantazione ionica utilizzando tecniche sperimentali innovative. Inoltre, sono presentate le potenzialità di queste tecniche nel campo applicativo, che mostrano quanto sia impropria una rigida separazione tra ricerca di base ed applicata.

L'attività svolta ha seguito due linee principali. La prima è stata finalizzata allo studio del danneggiamento di strutture cristalline da parte di ioni energetici, in particolare nel caso di dispositivi a semiconduttore. Questo è stato reso possibile dalla

messa a punto di una innovativa tecnica di misura che permette, attraverso la determinazione di grandezze elettriche, di ricavare informazioni sulla modifica strutturale di materiali, in particolare il silicio, sottoposti ad impiantazione ionica. La possibilità di caratterizzazione del danno fornisce informazioni sui meccanismi non ionizzanti di perdita di energia, che a loro volta sono legati ai potenziali di *screening* elettronico alla base dell'interazione tra gli ioni incidenti e quelli del materiale ospite. Inoltre, la possibilità di prevedere le caratteristiche del danno prodotto dall'impiantazione costituisce uno strumento innovativo per la progettazione di dispositivi elettronici, come nel caso dei diodi di potenza.

La seconda linea di ricerca è legata all'impiantazione di ioni radioattivi, in particolare di ^7Be , come strumento per l'introduzione di tracce di sostanze radioattive in un materiale secondo una distribuzione controllata senza produrre una alterazione significativa della struttura e della stechiometria del materiale stesso. In tal modo è possibile studiare l'influenza dell'ambiente chimico sul decadimento nucleare. In particolare, il modo di decadimento del ^7Be (cattura elettronica) accoppia le funzioni d'onda nucleari ed elettroniche e rappresenta, quindi, una sonda della densità elettronica nel materiale ospite, che può essere confrontata con i risultati sullo *screening* elettronico in reazioni di fusione nucleare. Dal punto di vista applicativo, la tecnica messa a punto permette di introdurre traccianti radioattivi in superfici di organi meccanici soggette ad usura per studiarne le proprietà meccaniche.

Nel primo capitolo vengono richiamati brevemente alcuni aspetti della tecnica dell'impiantazione ionica. Chiaramente la complessità e la varietà dei fenomeni che sono alla base dell'impiantazione ionica e delle sue applicazioni rendono la presentazione di un quadro unitario di questo campo un obiettivo che va oltre lo scopo del presente lavoro di tesi. Vengono invece presentati alcuni concetti fondamentali, utili per la comprensione della tesi. Nel secondo capitolo viene descritta la tecnica utilizzata per la caratterizzazione del danneggiamento prodotto nel silicio mediante l'impiantazione di elio. Vengono discussi gli aspetti salienti della tecnica e la procedura di messa a punto per le misure svolte. I risultati sono confrontati con le simulazioni ottenute

con il codice TRIM, attualmente largamente utilizzato per il calcolo del danneggiamento indotto da ioni energetici nella materia. Infine viene presentata l'applicazione di questi risultati per l'ottimizzazione di diodi di potenza. Nel terzo capitolo viene presentata la tecnica di impiantazione dello ione radioattivo ^7Be . Le procedure di produzione del fascio e di impiantazione sono descritte. Vengono presentati i risultati della misure di vita media del ^7Be in diversi ambienti metallici, come parte di uno studio di fattibilità di una tecnica per la misura dell'usura meccanica mediante l'impiantazione di ^7Be . Nel quarto capitolo si confrontano le informazioni sulla densità elettronica nei metalli ottenute dalle misure di vita media del ^7Be con quelle ottenute attraverso misure dello *screening* elettronico in reazioni nucleari di fusione a bassa energia. Infine, sono discussi i risultati di questo lavoro e le prospettive di questa attività, e in particolare vengono proposti possibili approcci sperimentali per lo studio di alcuni aspetti non chiariti nell'ambito di questo lavoro di tesi.

Capitolo 1

L'impiantazione ionica

La tecnica di impiantazione ionica si è affermata negli ultimi decenni come strumento privilegiato per la modificazione dei materiali. Le alterazioni della struttura del materiale prodotte dal bombardamento ionico da un punto di vista molto generale si possono classificare di due tipi: a) la modificazione della composizione del materiale, ossia una alterazione “stechiometrica” e b) il danneggiamento strutturale indotto dagli urti balistici degli ioni incidenti nel materiale. In seguito ad una impiantazione ionica, sono sempre presenti entrambe le modificazioni. Tuttavia, intervenendo sulla dose o tramite trattamenti termici successivi, è possibile minimizzare un tipo di modificazione rispetto all'altra, a seconda della particolare applicazione.

In particolare, l'impiantazione offre la possibilità di controllare in maniera molto accurata il tipo di danno indotto grazie in parte alla purezza isotopica del fascio di ioni che si realizza tramite un acceleratore di particelle, ed in parte al controllo della dose e della profondità alla quale si localizza sia il danneggiamento strutturale, sia la specie ionica impiantata. In questo capitolo, cercheremo di chiarire i meccanismi con cui uno ione di energie utili per l'impiantazione ($1 \text{ keV} < E < 10 \text{ MeV}$) perde energia lungo il suo percorso nella materia. Particolare attenzione sarà data alla perdita di energia che subisce lo ione incidente a causa degli urti elastici con gli ioni del reticolo cristallino, perché direttamente responsabile del danneggiamento strutturale del mezzo. Inoltre, sarà analizzato il danneggiamento indotto nel silicio per impiantazione

di ioni leggeri, al fine di interpretare i risultati delle misure di *lifetime* di ricombinazione riportati nel Capitolo II. In particolare, sarà descritta l'evoluzione del difetto in seguito all'impiantazione, dalla ricombinazione, alle principali reazioni chimiche tra i difetti che conducono alla stabilizzazione del danno ad una fissata temperatura.

1.1 La tecnica

Con il termine impiantazione ionica si intende l'incorporazione di selezionate specie atomiche nei materiali, mediante l'uso di fasci di ioni energetici prodotti da acceleratori di particelle. In questo senso, l'impiantazione si distingue dall'irraggiamento, che consiste nell'esposizione di un materiale a fasci di ioni che hanno energia sufficiente da attraversare l'intero spessore del materiale. Un acceleratore che raggiunge energie dell'ordine dei MeV permette agli ioni di penetrare la materia fino a profondità, nel caso degli ioni più leggeri, dell'ordine di $100\ \mu\text{m}$.

La tecnica di impiantazione ionica ha conosciuto una enorme diffusione, grazie alle applicazioni nel campo della microelettronica e dei circuiti integrati dalle dimensioni sempre più ridotte (Very Large Scale Integration). In questo ambito applicativo, l'impiantazione ionica è utilizzata principalmente per incorporare droganti nel silicio per realizzare transistor, grazie alla capacità di realizzare profili di drogaggio ben localizzati e controllati. L'interesse in questo settore ha dato impulso a una gran mole di lavori e studi riguardanti il danneggiamento indotto dall'impiantazione ed i metodi di recupero, ossia di eliminazione o stabilizzazione del danno indesiderato. Negli ultimi anni, tuttavia, è emerso un nuovo interesse riguardo alla fisica del danno indotto dall'impiantazione ionica. Il danneggiamento non è più visto solamente come una conseguenza indesiderata di una tecnica che mira al drogaggio di un materiale, ma, più in generale, come strumento in grado di alterare localmente alcune caratteristiche del materiale. Questa peculiarità sta spingendo la ricerca in questo settore verso il *damage engineering*, cioè lo studio della formazione di strutture di difetti in materiali cristallini, al fine di ottimizzare le proprietà di un materiale, in relazione

alle particolari applicazioni.

Le principali caratteristiche della tecnica di impiantazione ionica sono:

Localizzazione del danno. I meccanismi di perdita di energia, che vedremo nel prossimo paragrafo, sono tali che sia gli ioni impiantati, sia il danneggiamento della struttura reticolare del materiale che gli ioni creano al loro passaggio si distribuiscono in un sottile strato alla profondità alla quale si arrestano le particelle. Naturalmente, questi processi sono di natura stocastica e, maggiore è il numero di interazioni che lo ione subisce nel materiale, maggiore sarà lo *stragglings*, cioè la dispersione in profondità del danneggiamento (si veda la Figura 1.1). Tale tecnica permette di localizzare in profondità gli ioni impiantati con distribuzioni molto strette fino a energie di circa 10 MeV per gli ioni più leggeri. In ogni caso, la piccola dispersione energetica e angolare del fascio incidente che si riesce ad ottenere nei comuni acceleratori permette di limitare le cause di dispersione in profondità degli ioni impiantati ai soli processi di interazione ione-materia.

Purezza. Un acceleratore di particelle permette di selezionare con alto grado di precisione la specie isotopica del fascio, grazie a vari elementi di analisi nel sistema di trasporto degli ioni accelerati. Questa caratteristica, insieme alla possibilità di realizzare le impiantazioni in condizioni di alto vuoto, permettono di ottenere l'elevata purezza della specie impiantata, caratteristica essenziale per tutte le applicazioni che sono particolarmente sensibili all'introduzione di impurezze nel campione (come nei dispositivi elettronici).

Controllo della dose. Le tipiche dosi che si utilizzano nell'impiantazione dei semiconduttori vanno da 10^{12} a 10^{16} atomi/cm². In generale, il limite inferiore della dose impiantabile (inferiore a 10^{12}) è definito dal limite di sensibilità della misura della dose, che in genere viene effettuata tramite misure in corrente;

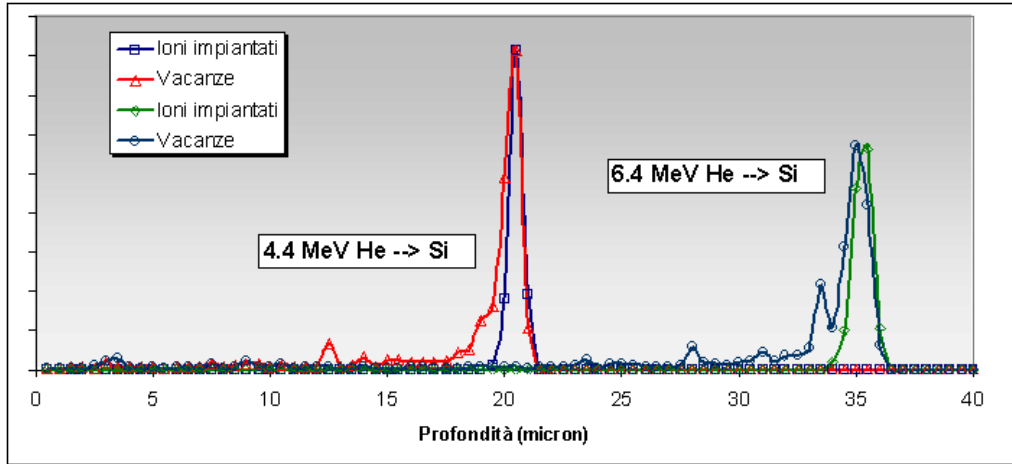


Figura 1.1: Simulazioni TRIM 2003 delle distribuzioni in profondità (in unità arbitrarie) degli ioni e delle vacanze che si ottengono tramite impiantazioni di He di energie pari a 4.4 e 6.4 MeV nel silicio.

la dose massima, invece, non è legata ad un limite della tecnica in sé, ma alla solubilità della specie impiantata nel materiale. Oltre, tale limite infatti, il materiale raggiunge la saturazione e si attiva un processo di evaporazione degli ioni dalla superficie. Nel Capitolo IV, ad esempio, sarà descritta una tecnica di impiantazione per la produzione di bersagli per esperimenti di fisica nucleare basata sulla saturazione della concentrazione di deuterio nei metalli.

Un'ulteriore interessante applicazione dell'impiantazione ionica, oltre al danneggiamento localizzato, consiste nella possibilità di incorporare specie atomiche accuratamente selezionate in dosi molto basse. Nella maggior parte dei casi, tali impiantazioni non sono in grado di modificare apprezzabilmente le caratteristiche macroscopiche di un materiale ed il danno indotto dall'impiantazione è a tutti gli effetti trascurabile. Tuttavia, è proprio questa proprietà che può trovare nuovi campi applicativi. Infatti, se la specie impiantata è un radionuclide, la sua presenza nel materiale può essere rivelata, non per alterazione delle caratteristiche del materiale, ma tramite più sensibili tecniche nucleari. Questa tecnica innovativa apre la strada

a tutta una serie di ricerche (nella fisica di base ed in quella applicata), in cui si ha l'esigenza di introdurre nel materiale una "sonda" che non ne alteri le caratteristiche. Nei prossimi capitoli, sarà mostrato come l'impiantazione a basse dosi di ^7Be , un radionuclide γ emettitore, possa essere utilizzata sia, in campo applicativo, come nuova tecnica per la misura dell'usura meccanica dei materiali¹ (Capitolo III), sia come sonda per verificare il comportamento degli elettroni liberi nei metalli.

Un metodo alternativo all'impiantazione ionica per la modificazione localizzata delle caratteristiche del materiale è la diffusione di specie ioniche nel materiale, grazie a atmosfere controllate in pressione e temperatura. Tale tecnica trova applicazione quando si desidera ottenere un profilo costante del drogante nel materiale (anche se vi sono effetti di bordo superficiali che non possono essere eliminati). La diffusione può essere alternativa o complementare² all'impiantazione ionica per le applicazioni che prevedono la semplice distribuzione uniforme di una specie atomica. Tuttavia, essa non permette di realizzare modifiche più complesse della composizione e della struttura del materiale.

1.2 La fisica dell'impiantazione

Abbiamo visto nel precedente paragrafo quali siano le principali caratteristiche ed i possibili sviluppi della tecnica di impiantazione ionica. Se da una parte tale tecnica costituisce lo strumento più naturale per la comprensione dei meccanismi fondamentali della perdita di energia degli ioni nella materia allo stato solido, il crescente interesse per il *damage engineering*, vale a dire l'utilizzazione del danneggiamento dei materiali al fine di modificarne localmente le caratteristiche, offre all'impiantazione

¹Come sarà descritto nel Capitolo III, per questa applicazione nasce l'esigenza di impiantare distribuzioni arbitrarie di ^7Be in profondità. Punto cruciale della tecnica in questo caso è il controllo della dose in funzione della energia di impiantazione, cosa che non può essere fatta con una misura di corrente, ma con tecniche nucleari più elaborate.

²Recenti ricerche utilizzano l'impiantazione ionica in combinazione con la tecnica di diffusione. Una volta creato un difetto localizzato tramite impiantazione, la concentrazione della specie introdotta nel materiale per successiva diffusione tende ad accumularsi in corrispondenza dello strato danneggiato [3], offrendo così la possibilità di creare profili arbitrari in profondità della specie diffusa limitando contemporaneamente il danno indotto dall'impiantazione.

ionica nuovi sviluppi applicativi.

L'obiettivo ambizioso posto negli ultimi anni consiste nel trovare una chiara relazione tra il danneggiamento creato ed i parametri dell'impiantazione (energia, dose, specie ionica, angolo di impiantazione, temperatura, ecc.). Il problema è spesso estremamente complesso e, ad oggi, tale relazione non è del tutto compresa. Va infatti sottolineato che la comprensione dei meccanismi di perdita di energia non è di per sé sufficiente al fine di prevedere il tipo di difetto stabile creato in seguito all'impiantazione. Viceversa, lo studio del danno prodotto può fornire nuovi strumenti per una più accurata comprensione dei meccanismi di interazione ione-materia. Infatti, la gran parte dei difetti che si introducono nel processo di impiantazione ionica sono conseguenza di una serie di urti a catena tra gli ioni del mezzo che ogni singolo ione impiantato genera lungo il suo percorso. Vedremo che questo processo, che prende il nome di cascata, può coinvolgere anche centinaia di ioni. Non esistono tecniche sperimentali in grado di misurare il numero e la distribuzione dei difetti puntuali che si creano lungo il percorso dello ione nel mezzo ed in seno alle cascate, perché questi difetti sono estremamente instabili e tendono a ricombinarsi in tempi $\cong 10^{-13}$ s [18] anche a temperature di impiantazione estremamente basse. La conoscenza della dinamica del processo di impiantazione si basa su tecniche di simulazione Monte Carlo. Il confronto sperimentale può avvenire solo in maniera indiretta, osservando le modifiche stabili introdotte nel materiale impiantato, tramite tecniche di misura di vario tipo (nucleare, ottica, elettrica, a seconda del tipo di materiale e di danno). Lo studio teorico della struttura del danno prodotto dall'impiantazione ionica non può quindi prescindere dalla conoscenza dei meccanismi di perdita di energia e dalla simulazione della dinamica del danneggiamento, essendo questi fortemente interconnessi.

La perdita di energia specifica dE/dx per unità di lunghezza di uno ione nel suo passaggio in un materiale cristallino si distingue in genere in due termini, che si assume non interferiscano tra loro:

$$\frac{dE}{dx} = \left. \frac{dE}{dx} \right|_e + \left. \frac{dE}{dx} \right|_n \quad (1.1)$$

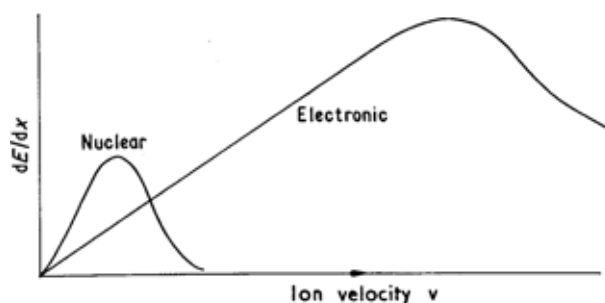


Figura 1.2: Andamento qualitativo della perdita di energia elettronica e nucleare in funzione della velocità del proiettile.

ossia, rispettivamente, perdita di energia elettronica e nucleare. L'andamento qualitativo di questi due contributi in funzione della velocità dello ione incidente è mostrato in Figura 1.2. La perdita di energia nucleare domina a bassa energia, cioè dell'ordine dei keV. Essa è dovuta alle collisioni elastiche tra gli ioni incidenti e gli ioni del reticolo cristallino. La perdita di energia elettronica, invece, che contribuisce maggiormente ad alte energie, dipende dallo *scattering* anelastico degli ioni con gli elettroni del mezzo.

1.2.1 Perdita di energia nucleare

La perdita di energia che abbiamo definito nucleare è di particolare interesse perché essa è responsabile della gran parte del danneggiamento del reticolo cristallino.

Consideriamo lo *scattering* di una particella (proiettile) di carica nucleare $+Z_1e$ che incide, con velocità non relativistica, su un'altra (bersaglio) di carica $+Z_2e$, dove e è la carica dell'elettrone. Nel caso più generale, le particelle bersaglio e proiettile hanno elettroni orbitali legati che schermano le rispettive cariche nucleari.

Il problema dello *scattering* di due corpi in un campo centrale si semplifica molto se si sceglie il sistema di coordinate del centro di massa, in cui il moto delle due particelle è

simmetrico ed è equivalente al moto di una particella di massa pari alla massa ridotta del sistema che è soggetta ad un campo di forze centrale. L'unica ipotesi che sta alla base di questa descrizione è che la forza si espliciti solo sulla congiungente delle due particelle. Per la simmetria del problema, il moto giace sul piano individuato dalla velocità dello ione incidente e dalla posizione dello ione bersaglio. In tale piano, è conveniente scegliere le coordinate polari r e φ , dove r è la distanza della particella di massa ridotta³ M_c dall'origine del sistema del centro di massa e φ è l'angolo azimutale. L'energia E_c ed il momento angolare J_c del sistema si conservano durante l'urto. Queste quantità si possono calcolare prima dell'urto:

$$\begin{aligned} E_c &= \frac{1}{2}M_c v_c^2 \\ J_c &= M_c v_c p \end{aligned}$$

dove v_c è la velocità del centro di massa nel sistema di laboratorio e p è il parametro d'impatto dell'urto. Per la conservazione dell'energia e del momento angolare, si ha:

$$\begin{aligned} E_c &= \frac{1}{2}M_c(\dot{r}^2 + r^2\dot{\varphi}^2) + V(r) \\ J_c &= M_c r^2 \dot{\varphi} \end{aligned}$$

dove con \dot{r} e $\dot{\varphi}$ si intendono le derivate di tali funzioni rispetto al tempo e $V(r)$ è il potenziale centrale di interazione.

Risolvendo il sistema di equazioni rispetto a φ , si ottiene l'angolo di *scattering* nel sistema del centro di massa, in funzione del potenziale centrale $V(r)$, del parametro d'impatto p e dell'energia del centro di massa E_c :

$$\varphi = \pi - 2 \int_{r_{min}}^{\infty} \frac{p dr}{r^2 [1 - \frac{V(r)}{E_c} - \frac{p^2}{r^2}]^{1/2}} \quad (1.2)$$

dove r_{min} è la distanza di minimo avvicinamento, che si ottiene quando il parametro di impatto è nullo. Questa equazione permette di ottenere inoltre l'energia trasferita al bersaglio nell'urto, tramite la relazione:

³ $M_c = M_1 M_2 / (M_1 + M_2)$; M_1 ed M_2 sono rispettivamente le masse delle particelle incidente e bersaglio.

$$T = \frac{4E_0 M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} \sin^2 \frac{\varphi}{2} \quad (1.3)$$

dove E_0 è l'energia cinetica iniziale dello ione incidente. Si osservi che la (1.2) e la (1.3) sono valide per un generico campo di forze centrale. Esse, quindi, si possono applicare anche nel caso in cui sia presente il potenziale di *screening* generato dagli elettroni atomici del bersaglio e del proiettile, perché tale potenziale è ancora a simmetria sferica.

Il potenziale di *screening* si può esprimere come rapporto tra il potenziale atomico effettivo ed il potenziale coulombiano del nucleo non schermato:

$$\phi(r) = \frac{V(r)}{Ze/r} \quad (1.4)$$

In genere, si utilizzano modelli statistici per valutare i potenziali atomici $V(r)$. I più usati, riportati in Figura 1.3, sono l'approssimazione di Sommerfeld del potenziale di Thomas-Fermi, l'approssimazione di Moliere ed i potenziali di Lenz-Jensen e di Bohr. Tali potenziali sono sempre il prodotto, come risulta dalla (1.4), di una funzione di r e di un termine coulombiano, che va come $1/r$.

I potenziali di *screening* ϕ possono essere calcolati utilizzando differenti approcci [1]. Un primo metodo consiste nel risalire al potenziale interatomico a partire dai dati sperimentali cristallografici. Sebbene si ottengano potenziali molto accurati su scala interatomica, tali potenziali non possono essere utilizzati alle piccole distanze, cui lo *scattering* nucleare è sensibile. Inoltre, si possono ottenere solo i potenziali dei materiali monoatomici cristallini. Il secondo approccio è completamente teorico. Si parte da due generici atomi le cui distribuzioni elettroniche si sovrappongono durante lo *scattering* ed in base a metodi di campo autoconsistente di Hartree-Fock a molte configurazioni si calcolano le nuove orbite elettroniche durante l'urto. Questo metodo è il più accurato e generale tra tutti, ma troppo sofisticato per lo studio delle collisioni atomiche. Esso può quindi essere utilizzato per stabilire l'accuratezza di approcci più

semplificati. La tecnica più utilizzata consiste in un approccio quanto-meccanico semplificato, suggerito da Gombas [1]. Partendo da due distribuzioni di carica atomica e si calcola il potenziale interatomico utilizzando l'approssimazione di densità locale senza considerare la riconfigurazione della struttura atomica. Il numero di elettroni appartenenti a ciascun atomo in ogni elemento di volume non cambia durante l'interazione, mentre nella regione di sovrapposizione tra le distribuzioni di carica il numero di elettroni può cambiare. Gli elettroni in tale volume si trattano come un gas di elettroni liberi. Il volume di sovrapposizione sottrae energia al sistema perché diminuisce l'energia potenziale attrattiva a causa del principio di esclusione di Pauli. Infatti, l'aumento di densità elettronica promuoverà alcuni elettroni a livelli energetici più alti. Tale metodo approssimato prevede quindi il calcolo dell'energia coulombiana di interazione tra tutti gli elettroni ed i due nuclei ed il calcolo dell'aumento di energia che va in eccitazione ed effetti di scambio per gli elettroni che si trovano nel volume di sovrapposizione.

L'energia persa per unità di cammino dE/dx si esprime in funzione della sezione d'urto della perdita di energia nucleare $S_n(E)$ come:

$$\frac{dE}{dx} = NS_n(E) \quad (1.5)$$

dove N è la densità atomica del bersaglio. La perdita di energia nucleare totale si ottiene sommando l'energia trasferita su tutti i possibili parametri d'impatto, cioè:

$$S_n(E) = \int_0^\infty T(E, p) 2\pi p dp = 2\pi\gamma E_0 \int_0^{p_{max}} \sin^2 \frac{\varphi}{2} p dp \quad (1.6)$$

dove $\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2}$ e la somma si estende fino a p_{max} che è la somma dei raggi dei due atomi collidenti. Lindhard et al. estesero il calcolo basato sulle distribuzioni elettroniche di atomi isolati a quelle che si realizzano nei solidi. Usando il loro formalismo, si definisce:

$$S_n(\epsilon) = \frac{\epsilon}{\pi a_U^2 \gamma E_0} S_n(E) \quad (1.7)$$

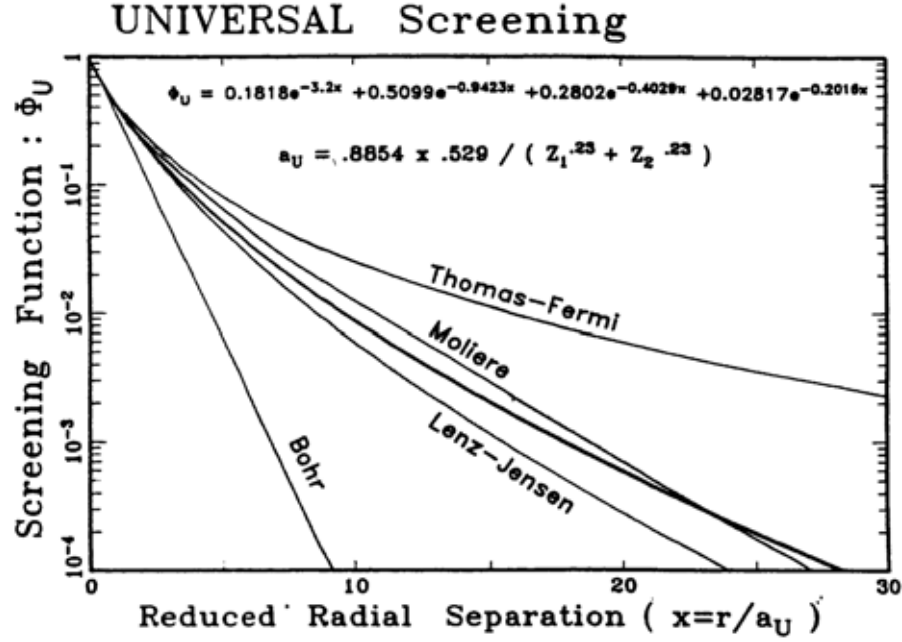


Figura 1.3: Andamento di alcune funzioni di *screening* analitiche, graficate in funzione delle variabili ridotte definite nel testo, e del fit di Φ_U di J. F. Ziegler [1] (in grassetto). Sono, inoltre, riportati i parametri del fit e l'espressione della lunghezza universale di *screening* a_U .

dove ϵ è l'energia ridotta introdotta da Lindhard et al.:

$$\epsilon \equiv \frac{a_U M_2 E_0}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} \quad (1.8)$$

e a_U è la lunghezza universale di *screening*, la cui espressione, valutata da J.F.Ziegler [1] è riportata in Figura 1.3.

La Figura 1.4 mostra le sezioni d'urto di *stopping* nucleare in funzione della energia ridotta ϵ per le funzioni di *screening* analitiche della Figura 1.3; i punti sono calcolati in base alla funzione di *screening* Φ_U di Ziegler riportata in Figura 1.3. La S_n in termini di unità ridotte è:

$$S_n(\epsilon) = \frac{\ln 1 + a\epsilon}{2(\epsilon + b\epsilon^c + d\epsilon^{1/2})} \quad (1.9)$$

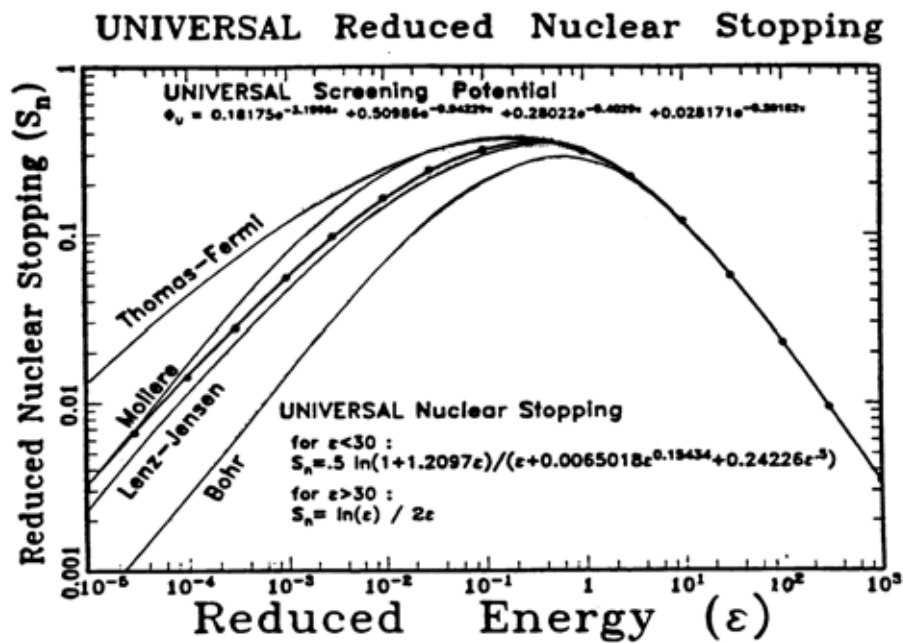


Figura 1.4: Sezione d'urto ridotta della perdita di energia nucleare in funzione dell'energia ridotta ϵ introdotta da Lindhard et al. definita nel testo. I punti nel grafico sono relativi alla funzione di *screening* universale fittata da J. F. Ziegler [1], riportata in Figura 1.3, mentre le curve sono calcolate in base alle funzioni di *screening* analitiche ricavate da modelli classici mostrate in Figura 1.3.

dove a , b , c e d sono i coefficienti del fit riportati in Figura 1.3. Ad alte energie, la forma della (1.9) non è appropriata e va utilizzata l'espressione ricavata dallo *scattering* Rutherford:

$$S_n(\epsilon) = \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon} \quad (1.10)$$

Risulta chiaro, infine, che i dati sperimentali sulla perdita di energia nucleare giocano un ruolo fondamentale nella parametrizzazione del potenziale di *screening* universale Φ_U . Lo studio del danneggiamento stabile prodotto dall'impiantazione, d'altra parte, dipende strettamente dalla perdita di energia nucleare e può, quindi, costituire un'informazione indiretta sul potenziale Φ_U .

1.2.2 Perdita di energia elettronica

La perdita di energia elettronica è dovuta alle collisioni anelastiche dello ione incidente con gli elettroni nel mezzo. Il primo risultato rilevante nello studio della perdita di energia elettronica si deve a Bohr (1913). In base a considerazioni classiche, mostrò che, se la velocità v dello ione incidente di carica Z_1 risulta essere maggiore di $Z_1 e^2/\hbar$, la perdita di energia dello ione per unità di lunghezza è:

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N}{mv^2} B \quad (1.11)$$

dove m è la massa dell'elettrone, N la densità atomica del bersaglio e B è la quantità adimensionale:

$$B = Z_2 \ln \frac{p_{max}}{p_{min}} \quad (1.12)$$

in cui Z_2 è il numero atomico del bersaglio e p_{max} e p_{min} sono i limiti superiore ed inferiore del parametro d'impatto. $p_{min} = 2Z_1 e^2/mv^2$ è la distanza di minimo avvicinamento che si ottiene per collisioni con parametro d'impatto nullo; $p_{max} = v/w_j$, dove w_j è la frequenza della j -esima orbita. In seguito, Bethe confermò il risultato (1.11) nel quadro della meccanica quantistica, limitatamente alle velocità

dello ione incidente v tali che:

$$\frac{2Z_1Z_2e^2}{\hbar v} < 1 \quad (1.13)$$

cioè la (1.11) è una buona approssimazione della perdita di energia elettronica, se l'energia potenziale è minore dell'energia cinetica in modo che l'onda incidente sia solo debolmente influenzata dal potenziale di interazione. La formula di Bethe, trascurando i fattori relativistici che non sono rilevanti nel range di interesse per le impiantazioni, è:

$$-\left.\frac{dE}{dx}\right|_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N}{mv^2} B = \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N}{mv^2} Z_2 \ln \frac{2mv^2}{I} - C_K - C_L \quad (1.14)$$

dove I è l'energia di eccitazione media degli elettroni nel bersaglio e C_K e C_L sono i termini di correzione di shell. Man mano che lo ione penetra nella materia, la perdita di energia elettronica cresce raggiungendo il massimo mostrato in Figura 1.2. La probabilità di catturare elettroni nel mezzo cresce progressivamente e la carica dello ione diventa minore di Z_1 . La formula (1.14) resta valida se si sostituisce a Z_1 la carica effettiva γZ_1 , dove $\gamma = \gamma(Z_1, Z_2, v, \rho)$ e ρ è la densità del mezzo. La formula di Bethe-Bloch (1.14), a basse velocità, è valida per quasi tutti i valori di Z_1 e Z_2 , eccetto per qualche valore di Z_1 in cui vanno considerate fluttuazioni della carica dello ione incidente. Si assume usualmente che per ioni leggeri, H e He, la teoria di Bethe-Bloch è valida per energie al di sotto di 1 MeV/amu [4].

Finora abbiamo ricavato l'espressione della perdita di energia elettronica considerando le interazioni ione-materia come una successione di eventi indipendenti di *scattering* anelastico del proiettile sugli ioni del materiale. Un approccio alternativo, dovuto a Fermi e Teller, ed in seguito applicato al problema della perdita di energia degli ioni nella materia da Lindhard [2], consiste nel considerare il mezzo assorbente come un plasma di elettroni con distribuzioni di densità e di energia di Thomas-Fermi o Hartree-Fock, in cui sono immersi i nuclei carichi positivamente. La frequenza classica caratteristica del plasma ω_0 può essere interpretata come frequenza di oscillazione degli elettroni attorno ai nuclei che hanno minore mobilità. La particella energetica

nel suo passaggio polarizza il mezzo, cui viene attribuito una costante dielettrica complessa, la cui parte immaginaria tiene conto dei processi di assorbimento di energia. In tale modello, p_{max} ha una interpretazione del tutto naturale, perché in un plasma esiste la cosiddetta frequenza di cut-off adiabatica per la distanza ione-elettrone:

$$p_{max} = v/\omega_0 \quad (1.15)$$

al di sotto della quale l'interazione è troppo debole per eccitare il plasma. Lindhard suggerì che il calcolo della perdita di energia di uno ione in un mezzo è analogo a quello della resistenza elettrica di un metallo, che si ricava in base agli urti del gas di elettroni con ioni nei siti reticolari del mezzo. Così come la resistenza è proporzionale alla velocità di deriva degli elettroni (prima legge di Ohm), anche la perdita di energia sarà proporzionale a tale velocità. L'applicabilità della legge è limitata a velocità minori di $Z_1^{2/3}e^2/\hbar$. Utilizzando il modello atomico di Thomas-Fermi, Lindhard e Scharff ottengono:

$$-\left.\frac{dE}{dx}\right|_e = \zeta_e \cdot 8\pi e^2 N a_0 Z_1 Z_2 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-3/2} v/v_0 \quad (1.16)$$

dove a_0 e v_0 sono rispettivamente il raggio e la velocità dell'elettrone dell'atomo di idrogeno di Bohr, v è la velocità dello ione incidente, Z_1 e Z_2 sono i numeri atomici rispettivamente del proiettile e del bersaglio, N è la densità atomica del mezzo e ζ_e è una costante adimensionale dell'ordine di $Z_1^{1/6}$.

Analizziamo più in dettaglio i passaggi che portano a tale risultato. Si assume che il gas di elettroni sia descrivibile come un gas di elettroni liberi alla temperatura dello zero assoluto, che la densità iniziale del gas sia costante, che l'interazione dello ione sia una perturbazione per il gas di elettroni ed, infine, che le particelle siano non relativistiche.

La sezione d'urto della di perdita di energia elettronica, in tali ipotesi, risulta:

$$S_e = \int I(v, \rho) Z_1^2 \rho dV \quad (1.17)$$

dove I è la funzione di interazione di *stopping* di uno ione di carica unitaria e velocità v con un gas di elettroni liberi di densità ρ , Z_1 è la carica dello ione interagente,

ρ è la densità elettronica del bersaglio e l'integrazione è fatta su tutto il volume del bersaglio. La densità elettronica del bersaglio è normalizzata in modo tale che $Z_2 = \int \rho dV$ dove l'integrale è fatto stavolta sul volume atomico. Le proprietà fisiche del plasma di Lindhard si possono facilmente comprendere osservando le figure 1.5 e 1.6 [1]. Esse mostrano rispettivamente la dipendenza della funzione d'interazione e della perdita di energia dalla densità elettronica del bersaglio per alcune energie del proiettile. Come si vede, la funzione di interazione è praticamente piatta a basse densità, dove la velocità dello ione incidente è più bassa della velocità di Fermi del gas⁴. L'andamento cambia quando la velocità dello ione incidente diventa confrontabile con quella di Fermi. La Figura 1.6 mostra la funzione $I\rho$ che coincide con la perdita di energia elettronica, in unità di eV/nm, quando la carica dello ione è unitaria. Tale funzione è il prodotto di due termini in competizione, ossia la funzione di interazione che diminuisce all'aumentare della densità elettronica e la densità che ha andamento opposto.

La sezione d'urto teorica di perdita di energia elettronica di un protone in un solido è calcolata, a differenza del caso di un gas di elettroni liberi, con l'approssimazione di densità locale. Tale approssimazione consiste nel considerare ogni elemento di volume del solido come un plasma di elettroni indipendente. La sezione d'urto della perdita di energia elettronica S_e si calcola facendo una media pesata delle perdite di energia su tutti gli elementi di volume; i pesi sono dati dalle funzioni di distribuzione elettroniche del solido. L'approssimazione di densità locale è quella più usata per il calcolo teorico della risposta di un solido ad una perturbazione. Le assunzioni fondamentali dell'approccio di Lindhard per il calcolo dello *stopping* elettronico sono che la densità elettronica del bersaglio varia debolmente con la posizione e che i livelli

⁴Come vedremo più in dettaglio nel paragrafo 4.4.1, infatti, la velocità di Fermi è legata alla densità elettronica tramite la relazione:

$$v_F = \frac{\hbar}{m}(3\pi^2\rho)^{1/3} \quad (1.18)$$

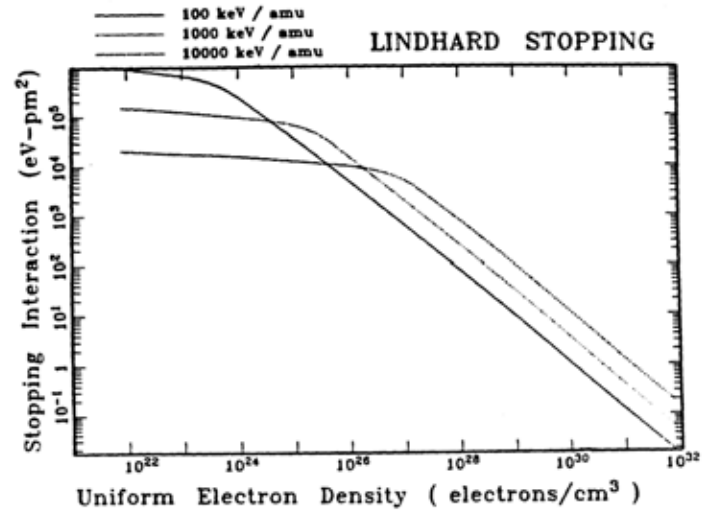


Figura 1.5: La funzione di interazione I di uno ione in un gas di elettroni, nell'approccio di Lindhard [1].

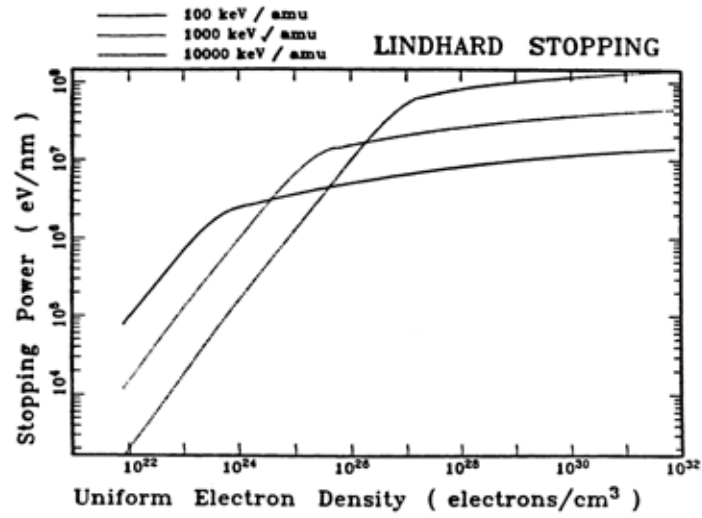


Figura 1.6: Perdita di energia elettronica di uno ione in un gas di fermioni liberi, in funzione della densità elettronica.

energetici e le probabilità di transizione dei livelli sono quelli del gas di elettroni liberi. Nella Figura 1.7, sono mostrati due grafici della perdita di energia elettronica nel Cu in funzione della distanza dal nucleo per uno ione di energia pari a 10000 keV/amu e 100 keV/amu [1]. Nei grafici sono mostrate le funzioni di densità elettronica in unità arbitrarie calcolate per il rame allo stato solido. La perdita di energia elettronica è sostanzialmente indipendente dalla velocità degli elettroni, quando il proiettile ha energia 10000 keV/amu, ossia ha una velocità 20 volte superiore alla velocità di Bohr. Quando, invece, l'energia è 100 keV/amu, la velocità del proiettile è più grande della velocità degli elettroni solo nella regione più interna dell'atomo di Cu dove la densità elettronica è bassa. L'interazione in questa regione produce solo una piccola eccitazione. La gran parte della perdita di energia elettronica, il 90%, si realizza con gli elettroni più esterni, che sono il 20% degli elettroni totali.

La trattazione fin qui esposta è valida per la perdita di energia degli ioni leggeri, vale a dire per protoni ed elio ed è sufficiente ai fini del presente lavoro. Gli ioni più pesanti richiedono una discussione più articolata [1] che tenga conto del loro stato di carica nel passaggio nella materia, il quale dipende strettamente dal rapporto tra velocità dello ione incidente e la velocità di Fermi del gas di elettroni.

1.3 Il danneggiamento

Abbiamo finora descritto i principali processi di perdita di energia di uno ione energetico nella materia. All'inizio del suo percorso, lo ione cederà energia agli elettroni del mezzo tramite urti anelastici ed, in seguito, quando il processo di perdita di energia nucleare diventa più probabile, l'energia sarà ceduta attraverso processi discreti, urtando elasticamente gli ioni del materiale. Questo accade quando lo ione è quasi alla fine del suo percorso nel mezzo.

Illustreremo ora le conseguenze del passaggio e dell'incorporamento degli ioni nella materia, in termini di danneggiamento e di modificazione delle caratteristiche

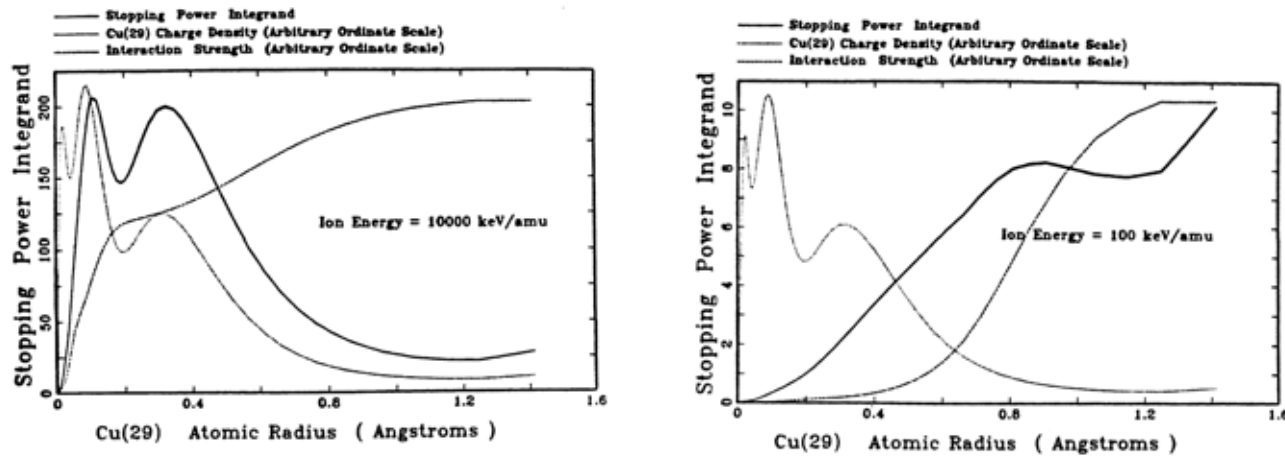


Figura 1.7: Andamento della perdita di energia elettronica per ioni di 10000 keV/amu e 100 keV/amu nel Cu. Nei grafici sono inoltre mostrate le distribuzioni elettroniche del Cu allo stato solido.

del materiale. Ci soffermeremo, in particolare, sul danneggiamento indotto dall'impiantazione di fasci di ioni leggeri (H, He) alle energie dei MeV nei semiconduttori (silicio, in particolare), al fine di interpretare i risultati delle misure descritte nel Capitolo II.

1.3.1 Il danneggiamento primario

Un ione dotato di energia cinetica dell'ordine dei MeV può attraversare molti strati atomici nel materiale perdendo energia a causa degli urti anelastici con il mare di elettroni nel mezzo. Quando tale particella urta uno ione del reticolo cristallino, può cedergli sufficiente energia da spostarlo dal suo sito originario. L'energia media necessaria si chiama energia di spostamento e va da 10 a 25 eV (15 eV, in particolare, per i semiconduttori). Questo urto genera una coppia di difetti puntuali, chiamati coppia Frenkel, costituita da uno ione interstiziale ed una vacanza (ossia, il sito reticolare

lasciato libero). L'energia di rinculo dello ione spostato è spesso tale da generare un processo a catena, chiamato cascata, in cui gli ioni urtati possono a loro volta fornire energia sufficiente per spostare altri ioni e così di seguito (Figura 1.8). Tuttavia, man mano che l'energia dello ione incidente viene depositata nel mezzo, il libero cammino medio dello ione tra due urti successivi diminuisce, visto che la sezione d'urto di *stopping* nucleare cresce al diminuire dell'energia. La regione massimamente danneggiata, quindi, è limitata ad un sottile strato di materiale. Nella serie di urti che costituiscono una cascata, esiste la possibilità che uno ione urtato occupi nuovamente un sito reticolare lasciato libero da un precedente urto. Questo accade quando uno ione urta un altro cedendogli sufficiente energia da spostarlo, ma non ne ha abbastanza per muoversi in avanti; si crea così un interstiziale, ma non una vacanza. Quindi il numero di interstiziali creato è dato dalla somma del numero di vacanze e del numero di collisioni di riposizionamento e, se non ci sono ioni che sfuggono dal materiale, il numero di vacanze è uguale al numero di interstiziali. Anche se le collisioni di riposizionamento possono sembrare poco probabili, esse possono ridurre il numero di vacanze fino al 30% [1] (sono particolarmente favorite quando il materiale impiantato è monoatomico).

L'intero evento di cascata che consegue al primo rinculo con lo ione incidente si esaurisce in circa 10^{-13} sec. Tuttavia, il processo lascia nel materiale una regione danneggiata in cui c'è un eccesso di energia che può essere dissipata sotto forma di vibrazioni del reticolo cristallino, ossia sotto forma di fononi. Questo tipo di diseccitazione ha luogo in generale quando l'energia dello ione incidente o emergente non è sufficiente a rompere un legame ionico cristallino. Si crea in questo modo uno *spike* termico, cioè un riscaldamento locale della regione danneggiata, la cui durata dipende dalla efficienza di conduzione del calore del materiale impiantato.

Va osservato che lo studio di un evento di cascata è in generale estremamente complesso, perché si tratta di un processo lontano dall'equilibrio; in alcuni casi, per una soddisfacente comprensione del processo, vanno considerati processi di interazione multipli e non solo binari. Per studiare la dinamica dell'impiantazione, ci si avvale

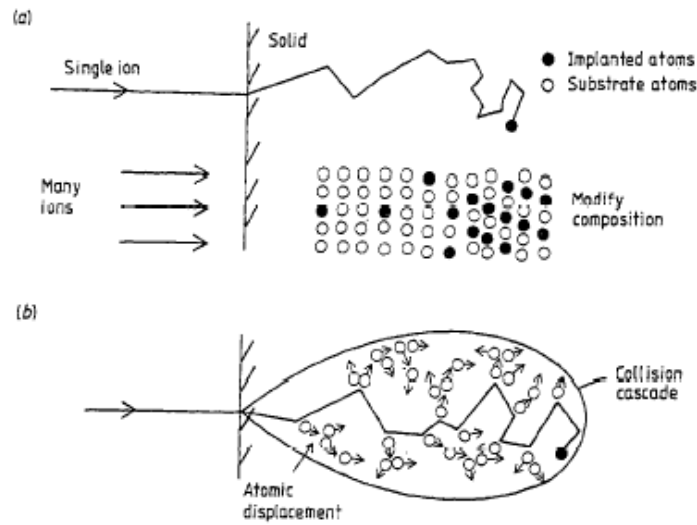


Figura 1.8: Sono schematicamente raffigurati il processo di impiantazione di ioni nella materia (a) e l'evento di cascata indotto (b).

di programmi di simulazione Monte Carlo, che permettono di seguire passo passo l'intero percorso di un arbitrario numero di ioni incidenti. Uno dei codici Monte Carlo più diffusi per bersagli amorfi è il programma sviluppato da J. F. Ziegler TRIM (Transport of Ions in Matter), che sarà di seguito ampiamente utilizzato. Esso si basa unicamente su collisioni di tipo binario. Codici Monte Carlo più sofisticati, come quelli di dinamica molecolare (Molecular Dynamics), sono in grado, invece, di considerare le interazioni multiple che avvengono nei processi di cascate non lineari. Nella gran parte delle applicazioni, e ai fini di questo studio, le simulazioni TRIM sono in grado di simulare efficacemente la distribuzione finale degli ioni nel materiale, le distribuzioni di perdita di energia e di danneggiamento primario (coppie di Frenkel) nel mezzo. Tale affermazione è confermata dai risultati sullo studio del danneggiamento nei semiconduttori (Capitolo II). In Figura 1.9, è riportato a titolo di esempio una simulazione TRIM dell'energia depositata per ionizzazione e per urti elastici in una impiantazione di 4.4 MeV di He nel silicio.

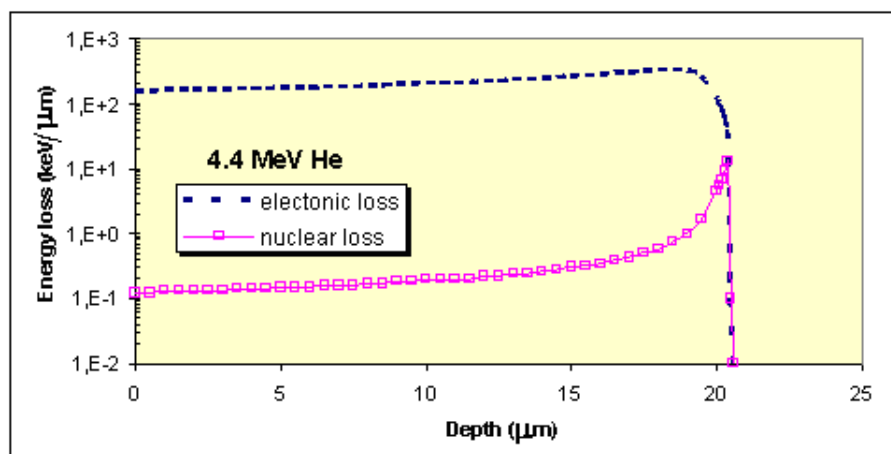


Figura 1.9: Simulazione TRIM (2003) della perdita di energia elettronica e nucleare di He di energia pari a 4.4 MeV nel Si.

1.3.2 Le reazioni chimiche tra i difetti

Numerosi studi sono stati condotti sull'evoluzione dei difetti primari creati dalla impiantazione. L'obiettivo finale è di riuscire a prevedere sulla base di una data distribuzione di difetti puntuali primari (coppie Frenkel), quale sia la configurazione del danneggiamento stabile. E' ben noto che solo una piccola percentuale di coppie elementari sfuggono alla ricombinazione all'interno delle cascate [18]. Infatti, la distribuzione di vacanze ed interstiziali è spazialmente correlata, visto che la probabilità di trovare una coppia vacanza/interstiziale è maggiore in vicinanza di un'altra coppia. Sia vacanze che interstiziali possono esistere in diversi stati di carica ognuno con una certa diffusività. L'elevata diffusività di entrambi i difetti primari conduce ad una grande instabilità del difetto prodotto e non è possibile osservarli direttamente anche a basse temperature di impiantazione. Il difetto secondario è il difetto che è "sopravvissuto" alla ricombinazione e che risulta in una configurazione stabile a temperatura ambiente. I difetti stabili creati dall'impatto diretto, senza considerare nessun processo di diffusione, sono stati individuati come divacanze (V_2 nel seguito) o più complessi cluster di vacanze da una parte e cluster simmetrici di interstiziali.

In base a quanto visto in precedenza, la perdita di energia nucleare diventa più rilevante all'aumentare della massa dello ione incidente. L'evidenza sperimentale deriva dal fatto che difetti del tipo VO (Vacanza-Ossigeno), che danno un'indicazione della distribuzione di vacanze libere, diminuiscono all'aumentare della massa dello ione impiantato, mentre i difetti tipo V_2 sono una funzione costante rispetto alla massa dello ione.

Un problema sperimentalmente controverso è la determinazione dei coefficienti di diffusione degli interstiziali e delle vacanze, rispettivamente D_I e D_V , i quali sono responsabili di strutture di danneggiamento secondario in alcuni casi molto diverse da quelle dovute alla distribuzione del danneggiamento primario. Alcuni autori attribuiscono una più grande diffusività alle vacanze, che sono quindi le prime che si stabilizzano pareggiandosi tra loro o accoppiandosi con una impurezza. Tuttavia, confrontando i difetti collegati a vacanze per vari flussi di impiantazione (si varia cioè la corrente del fascio) si può arrivare alla conclusione opposta e cioè che le vacanze diffondono meno rapidamente degli interstiziali. Si osserva, infatti, una diminuzione della concentrazione dei difetti legati alle vacanze all'aumentare del flusso di particelle incidenti [6].

Le vacanze e gli interstiziali che sopravvivono alla mutua ricombinazione o alla annichilazione attraverso difetti del cristallo come dislocazioni o attraverso la superficie possono stabilizzarsi pareggiandosi tra loro oppure interagendo con una impurezza del cristallo. Le maggiori impurezze presenti nel silicio sono:

Ossigeno. La concentrazione varia a seconda della tecnica utilizzata per la crescita del cristallo di silicio. E' stimata in 10^{15} atomi/cm³ nei silici ottenuti per crescita epitassiale, materiale utilizzato per le impiantazioni studiate nel Capitolo II. Nei cristalli di silicio l'ossigeno occupa siti interstiziali essendo elettricamente inattivo. E' noto essere una efficace trappola nella migrazione sia dei difetti legati alle vacanze che a quelli legati agli interstiziali;

Carbonio. Le concentrazioni di tale impurezza variano da 10^{16} a 10^{15} atomi/cm³.

Occupa siti sostituzionali e durante l'impiantazione interagendo con gli interstiziali forma il difetto C_I carbonio interstiziale. A causa della sua grande diffusività ($D_{C_I} = 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$) a temperatura ambiente, C_I è instabile e dà luogo ad una serie di difetti secondari accoppiandosi con altre impurezze.

Droganti. Sia nel silicio drogato n (fosforo, antimonio) sia in quello drogato p (boro), la specie drogante è coinvolta nella formazione di difetti secondari. Gli atomi di boro hanno lo stesso comportamento degli atomi di carbonio nell'intrappolare gli interstiziali nella loro diffusione e formano una configurazione interstiziale. Analogamente tutta una serie di difetti secondari si forma a partire dal boro interstiziale. Gli elementi del V gruppo si possono invece accoppiare con le vacanze che migrano e da questo punto di vista competono con l'ossigeno. Alternativamente, è possibile l'accoppiamento di un carbonio interstiziale creando così un difetto metastabile C_IP_S . La reazione è favorita in semiconduttori altamente drogati ($[P] > 10^{16} \text{ atomi/cm}^3$) con bassi contenuti di ossigeno e carbonio per minimizzare la competizione tra i centri $C_I O_I$ e $C_S C_I$.

Specie impiantate. Alcune delle specie impiantate più reattive possono formare difetti sia durante l'impiantazione, sia durante le successive reazioni. Tra tutte le specie l'idrogeno è stato riconosciuto come una delle specie maggiormente responsabile nella formazione di difetti secondari a causa della sua alta diffusività e della sua reattività nel silicio.

Metalli. Molti metalli nobili ed elementi di transizione interagiscono con i difetti primari e secondari. Lo studio dei difetti connessi a tali impurezze (*deep levels*) ha avuto un grande impulso per via dell'influenza che tali difetti hanno sulle caratteristiche elettriche dei dispositivi di potenza (§ 2.4.1).

In questo lavoro (si veda il Capitolo II), è stato studiato il danneggiamento indotto da impiantazioni di He in dispositivi in silicio drogato con fosforo ed ottenuto per crescita epitassiale. Le concentrazioni di impurezze stimate per questo tipo di dispositivi sono:

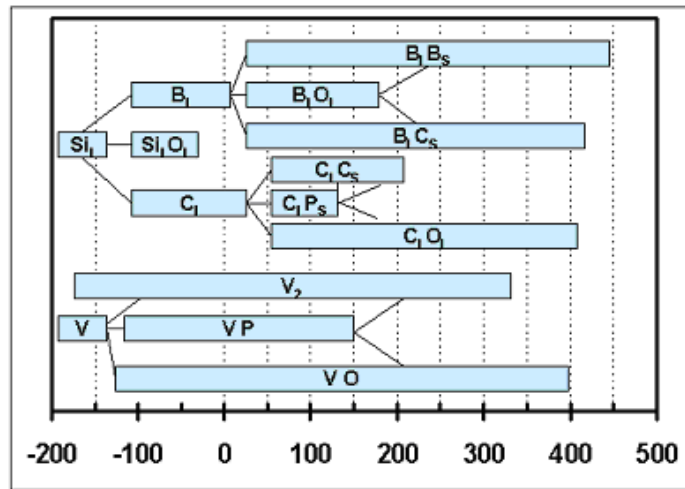


Figura 1.10: Schema dell'evoluzione termica dei difetti legati alle lacune ed agli interstiziali [6].

$[P] = 2 \times 10^{14}$ atomi/cm³, che può funzionare da trappola per : V e C_I;
 $[O] \approx 10^{15}$ atomi/cm³, " " " : V e I;
 $[C] \approx 10^{15}$ atomi/cm³, " " " : I.

1.3.3 L'evoluzione termica dei difetti

E' possibile disegnare uno schema (Figura 1.10) [6] dei differenti prodotti delle reazioni che coinvolgono difetti collegati a vacanze o interstiziali. Il bilanciamento tra le concentrazioni di tali prodotti è connesso sia alla temperatura, sia alla concentrazione relativa tra le impurezze.

L'evoluzione termica dei difetti introdotti è un altro aspetto cruciale associato al ruolo delle impurezze. In generale l'interazione dei difetti puntuali con le impurezze li stabilizza finché la temperatura non è sufficientemente elevata da attivare un nuovo

processo. La difficoltà di tali studi sta nel fatto che diversi difetti possono annichilare in un certo range di temperatura, il che complica l'identificazione dei meccanismi coinvolti e dei prodotti di reazione. A basse dosi il ruolo principale è giocato dalle impurezze che intrappolano altre impurezze o difetti primari dando luogo ad una nuova generazione di difetti.

I due principali processi attivati termicamente che sono responsabili del recupero dei difetti secondari sono la migrazione e la dissociazione. Nel caso della dissociazione, l'energia termica sposta uno dei componenti del difetto che parzialmente si dissocia dal difetto. Lo spostamento tuttavia è di poche distanze di reticolo e la intensa forza coulombiana riforma il difetto originario producendo un effettivo spostamento dell'intero difetto. Questo processo richiede una energia minore rispetto a quella necessaria a spostare tutto il difetto in una volta sola, ma d'altra parte è in grado di spostare il difetto solo di poche distanze reticolari. Se entrambi i processi sono attivi in un certo range di temperatura il rate di dissociazione e quello di migrazione sono confrontabili e sono difficili da separare.

Capitolo 2

Studio del danneggiamento nei semiconduttori

In questo capitolo mostreremo in che modo a partire da una misura di tipo elettrico sia possibile ottenere informazioni sulla struttura del danno indotto dall'impiantazione ionica e, più in generale, sui meccanismi di perdita di energia nucleare di uno ione che attraversa la materia.

La misura si basa sull'osservazione che il danno indotto dall'impiantazione ionica ha un effetto macroscopico sul funzionamento dei dispositivi elettronici. Ogni tipo di danno reticolare creato ha un diverso effetto elettrico che può essere messo in evidenza in particolari condizioni di funzionamento del dispositivo; è inoltre possibile, come vedremo, identificare la struttura del danno reticolare. In particolare, il parametro elettrico misurato è stato il tempo di vita medio di ricombinazione dei portatori di carica minoritari¹ il quale dipende, nel silicio, dalla presenza di livelli energetici accessibili all'interno della *bandgap*. Tali livelli sono associati a difetti reticolari che è possibile creare tramite l'impiantazione ionica. Ad ogni difetto è associato un particolare livello di energia nel *bandgap* e cui corrisponde un diverso comportamento elettrico dei dispositivi elettronici realizzati con il materiale danneggiato.

A questo scopo, sono state realizzate varie impiantazioni di He di diverse energie e

¹In seguito, il tempo di vita medio associato alla ricombinazione sarà chiamato anche lifetime.

dosi nei dispositivi in silicio e sono stati misurati i relativi profili di *lifetime*. Questi ultimi sono stati confrontati con le distribuzioni del danneggiamento primario atteso, in base alle simulazioni Monte Carlo TRIM dell'interazione di uno ione con la materia. Inoltre, dall'analisi in temperatura dei profili misurati, il tipo di danno è stato caratterizzato da un punto di vista microscopico, estraendo l'energia dei centri di ricombinazione introdotti dall'impiantazione.

E', infine, illustrata la ricaduta tecnologica dei risultati ottenuti, nell'ambito dell'ottimizzazione del processo di produzione dei diodi di potenza. Tale risultato rappresenta una applicazione del *damage engineering* ai dispositivi di potenza realizzata grazie alla tecnica di impiantazione ionica.

2.1 La misura “elettrica” del danneggiamento

In generale, in un semiconduttore all'equilibrio termico, coppie elettrone-lacuna (in seguito chiamate anche e-h) si generano e si ricombinano in continuazione a causa dell'agitazione termica. Questo accade quando un elettrone acquista energia sufficiente per passare dalla banda di valenza a quella di conduzione e viceversa. Le densità dei portatori di carica che si realizzano all'equilibrio possono essere alterate da una sorgente di energia esterna di tipo ottico, in cui l'eccitazione è una sorgente luminosa (laser, led, flash, ecc.) o di tipo elettrico, tramite, per esempio, la polarizzazione diretta di una giunzione p-n. L'eccesso di portatori n_0 creato al tempo $t=0$ tende a ricombinarsi fino a ristabilire le condizioni di equilibrio, seguendo l'andamento esponenziale:

$$n(t) = n_0 e^{-t/\tau_r} \quad (2.1)$$

dove $n(t)$ è l'eccesso di portatori al tempo $t > 0$ e τ_r il tempo di vita medio della ricombinazione. Nell'ambito della fisica dei semiconduttori, l'interesse per la determinazione del tempo medio di ricombinazione (τ_r) delle coppie e-h create a causa di una eccitazione esterna ha portato allo sviluppo di numerose tecniche sperimentali. Infatti, la conoscenza di τ_r ha grande rilievo per la comprensione delle caratteristiche

di un dispositivo elettronico nelle condizioni di esercizio. Ad esempio, esso influenza la velocità di *switching* dei dispositivi bipolari, il guadagno in corrente dei transistor bipolari e l'efficienza di conversione delle celle solari.

Le tecniche di misura del *lifetime* di ricombinazione più diffuse sono riportate in Tabella (2.1). Il limite della maggior parte di queste tecniche sta nell'impossibilità di misurare localmente il *lifetime*, il quale risulta mediato su tutto lo spessore del materiale analizzato. A tale riguardo, è opportuno ricordare che la misura del *lifetime* è particolarmente difficile da realizzare [7] in particolare quando tale parametro varia con la posizione all'interno del materiale, la qual cosa accade nei dispositivi sottoposti ad impiantazione ionica perché il danneggiamento reticolare si concentra ad una profondità che dipende dall'energia di impiantazione. Per questo motivo in questo lavoro è stata perfezionata una tecnica di misura, unica nel suo genere, che permette di stimare valori puntuali del *lifetime* di ricombinazione all'interno dei semiconduttori. Tale tecnica originale, sviluppata presso il Dipartimento di Ingegneria Elettronica e delle Telecomunicazioni dell'Università di Napoli Federico II (nel seguito DIET) [8], si basa sul funzionamento di un dispositivo di test in silicio. Sulla base delle misure delle tensioni e delle correnti indotte nel dispositivo, è possibile estrarre i valori del *lifetime* misurati a varie profondità. La tecnica permette quindi di mettere in evidenza le variazioni localizzate del *lifetime* e si è dimostrata particolarmente efficace nella misura della alterazione del *lifetime* prodotta dall'impiantazione ionica. L'impiantazione di ioni leggeri con dosi relativamente basse ($10^{11} \div 10^{12}$ ioni/cm²) produce difetti puntuali nella struttura del silicio, parte dei quali fungono da centri di ricombinazione tra gli elettroni e le lacune presenti nel dispositivo elettronico. Tali difetti sono in grado di aumentare la probabilità di ricombinazione e diminuiscono, quindi, il tempo di vita medio dei portatori di carica. Infatti, i meccanismi che assistono il processo di ricombinazione in un semiconduttore sono:

1. Il processo Shockley-Read-Hall. La ricombinazione SRH (si veda la Figura 2.1)

Tabella 2.1: Principali tecniche di misura utilizzate per la misura del tempo di ricombinazione τ_r .

Tecnica		Descrizione	Vantaggi e limitazioni
Photoconductive Decay		Tecnica di tipo ottico in cui si misura il decadimento dei portatori generati attraverso un impulso di luce.	Molto valida per la misura dell'efficienza delle celle solari. I limiti sono imposti dalla resistività del campione; permette di misurare tempi fino a ≈ 100 ns.
Surface Photovoltage (SPV)	Pho-	Misura indirettamente la τ_r tramite la lunghezza di diffusione dei portatori generati per eccitazione ottica di un laser.	Metodo non distruttivo, che non necessita giunzioni e, quindi, ben applicabile alle celle solari. Dipende dalla pulizia del campione, che incide sul coefficiente di riflessione.
Laser Pump		Misura a bassi livelli di iniezione le variazioni del coefficiente di assorbimento in un campione in silicio sottoposto ad un fascio laser	-
Reverse Recovery (RR)	Recov-	Tecnica di tipo elettrico che misura il tempo di decadimento della corrente in un diodo in seguito alla commutazione on/off.	Può misurare tempi di decadimento molto piccoli, fino a qualche ns.
Open Voltage Decay (OCVD)	Circuit Decay	Tecnica di tipo elettrico, si misura la forma d'onda di della tensione a circuito aperto di un diodo in seguito alla conduzione.	Tra le più utilizzate perchè facilmente implementabile nel circuito di misura.

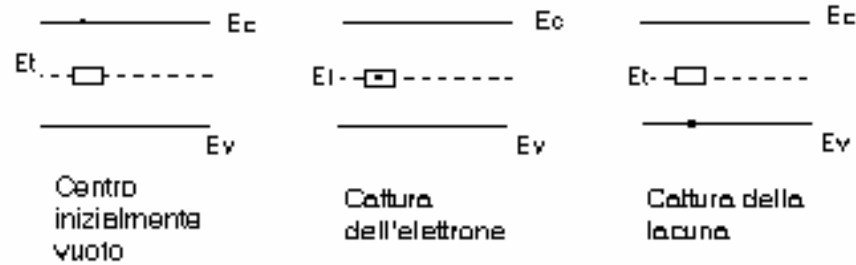


Figura 2.1: Schema della ricombinazione tramite il processo Shockley-Read-Hall, in cui la ricombinazione è assistita dal livello energetico isolato nella *bandgap* del semiconduttore E_t .

avviene attraverso un livello energetico E_t nella banda proibita del semiconduttore. Un elettrone in banda di conduzione viene catturato dal livello isolato E_t ed una vacanza in prossimità di tale livello occupato può ricombinarsi, eventualmente con emissione di fononi.

2. Ricombinazione radiativa. La coppia elettrone-lacuna in questo processo annichila direttamente da banda a banda, emettendo un fotone per liberare l'energia in eccesso.
3. Ricombinazione Auger. L'elettrone in banda di conduzione viene catturato direttamente dalla lacuna in banda di valenza e l'energia in eccesso è ceduta ad un altro elettrone in banda di conduzione.

Ciascun processo ha un tempo di vita caratteristico ed il tempo di ricombinazione totale risulta:

$$\tau_r = (\tau_{SRH}^{-1} + \tau_{rad}^{-1} + \tau_A^{-1})^{-1} \quad (2.2)$$

In particolare per il silicio, la probabilità di decadimento radiativo è trascurabile; inoltre, la ricombinazione Auger diventa significativa solo per drogaggi elevati. Nel

dispositivo di test utilizzato per la misura del *lifetime*, quindi, il principale processo di ricombinazione è quello SRH, cioè la ricombinazione indiretta tramite un livello energetico isolato E_t .

Il fatto che tali livelli isolati siano legati a difetti strutturali del reticolo cristallino ci ha spinto ad utilizzare la tecnica di misura del *lifetime* per ricavare il profilo del danneggiamento indotto dall'impiantazione ionica. Infatti, per quanto detto nel Capitolo I, l'impiantazione danneggia la struttura reticolare del materiale a causa degli urti elastici tra gli ioni. I difetti del reticolo introducono, in una descrizione microscopica, livelli energetici isolati nella *bandgap* del semiconduttore, parte dei quali possono assistere efficacemente la ricombinazione delle coppie e-h, tramite il processo SRH. La struttura del danno, ossia la distribuzione in profondità di tali difetti, può essere quindi messa in evidenza dalla forma del profilo del *lifetime*, il quale esibisce un minimo in corrispondenza della regione più danneggiata. Tale profilo, oltre ad essere di per sé di grande interesse nell'ambito delle applicazioni dell'impiantazione ionica ai diodi di potenza (si veda il §2.4.1), costituisce, più in generale, una informazione indiretta dell'interazione primaria tra ioni e reticolo cristallino. Il danneggiamento primario indotto dall'impiantazione consiste in una distribuzione di vacanze ed interstiziali. La distribuzione delle vacanze primarie simulata con TRIM è ottenuta in base a calcoli di *scattering* tra gli ioni, i quali dipendono, in ultima analisi, (si veda §1.2.1) dal potenziale di *screening* degli elettroni nel mezzo. Dal confronto tra questa distribuzione e quella del danno stabile misurata tramite il profilo di *lifetime*, è, quindi, possibile estrarre informazioni sul potenziale di *screening* universale Φ_U . Da questo punto di vista, la tecnica di misura del *lifetime* costituisce un valido strumento per lo studio della fisica di base dell'interazione ione-materia.

2.2 La tecnica sperimentale

Per ottenere il profilo di danneggiamento dovuto al bombardamento di un fascio di ioni nel silicio in base alle misure di *lifetime* di ricombinazione, i dispositivi di test in silicio devono essere direttamente impiantati, perché non è possibile realizzare dispositivi basati su materiale già danneggiato. Le impiantazioni per questo lavoro di tesi sono state eseguite presso il DTL (Bochum), dove è disponibile un fascio di He ed una linea dedicata all'impiantazione. Per quanto riguarda, invece, alcune impiantazioni di H e Li è stata progettata e realizzata una linea di fascio, descritta di seguito, che ricalca la stessa struttura della linea di impiantazione di Bochum. I campioni impiantati sono stati misurati tramite la tecnica di misura del *lifetime* di ricombinazione sia a temperatura ambiente, sia al variare della temperatura. Per migliorarne la sensibilità, tale tecnica è stata ottimizzata in modo da tenere conto delle modifiche che l'impiantazione apporta ad alcune caratteristiche del dispositivo, come l'alterazione della concentrazione di drogaggio efficace §2.3. I parametri di impiantazione dei dispositivi analizzati in questo lavoro sono riportati in Tabella (2.2).

2.2.1 La linea di impiantazione nei semiconduttori

La linea di impiantazione in Figura 2.2 è stata allestita presso il laboratorio dell'acceleratore Tandem TTT3 da 3 MV del Laboratorio del Dipartimento di Scienze Fisiche dell'Università Federico II di Napoli, nell'ambito dei finanziamenti del progetto del Centro Regionale di Competenza della Regione Campania per lo sviluppo di Nuove Tecnologie per le Attività Produttive.

La linea è stata progettata per l'impiantazione di ioni di varia natura (dall'H fino all'Al, con vari stati di carica) su campioni di grandi superfici, ossia di dimensioni massime fino a 5" (12.7 cm), dimensione del diametro di un wafer di silicio standard. Le dosi impiantabili vanno da 10^9 fino a 10^{14} ioni/cm². I limiti sono dettati dall'intensità delle correnti di ioni che si riescono a produrre presso il Tandem e dalla

Tabella 2.2: Parametri di impiantazione dei dispositivi analizzati in questo lavoro. Le impiantazioni sono state realizzate a temperatura ambiente, presso l'acceleratore DTL dell'Università della Ruhr di Bochum (Germania). I *range* degli ioni nel dispositivo sono stati calcolati tramite simulazioni TRIM 2003 [9] per le quali sono stati utilizzati i dati ottenuti dalle misure RBS riportate nel §2.3.

Specie ionica	Energia [MeV]	Dose [atomi/cm ²]	Range[μ m]
⁴ He	3.5	1×10^{11}	15
	4.4	1×10^{11}	20
	5.1	1×10^{11}	25
	5.7	1×10^{08}	29.5
		1×10^{10}	29.5
		5×10^{10}	29.5
		1×10^{11}	29.5
		2×10^{11}	29.5
	5.8	1×10^{11}	30

sensibilità del sistema di controllo della dose. La sorgente a disposizione è una sorgente a sputtering, che permette di ottenere correnti di protoni di circa 300 nA. Le tensioni utilizzabili all'acceleratore vanno da 0.5 MV a 2.8 MV. Al fine di realizzare impiantazioni su grandi superfici con distribuzioni superficiali degli ioni uniformi, all'uscita della valvola di canale (si veda Figura 2.2) è disposta una unità di scansione del fascio nelle due direzioni (x,y) ortogonali alla direzione di propagazione delle particelle (z). Tale unità è costituita da due coppie di piatti affacciati parallelamente tra loro, una nella direzione x e l'altra in quella y, cui vengono applicate delle tensioni oscillanti. Le frequenze di scansione $\omega_x=517$ Hz e $\omega_y=64$ Hz, sfasate di 180° sono scelte in modo che non risultino multiple tra loro, per evitare strutture nell'impiantazione; inoltre, sono sufficientemente elevate in modo da assicurare una buona uniformità anche per basse dosi. Le tensioni piatto-piatto raggiungono i ± 10 kV.

La deflessione di uno ione di carica q ed energia cinetica E , al primo ordine di approssimazione trascurando, cioè, gli effetti di bordo, risulta:

$$\alpha = \frac{Vlq}{2dE} = 4.01 \frac{V \times q}{E} \text{ rad} \quad (2.3)$$

dove V è la differenza di potenziale tra i piatti espressa in Volt; l e d sono la lunghezza e la distanza di separazione dei piatti ed E è l'energia espressa in eV. La lunghezza della linea è stata progettata per consentire di impiantare protoni di energia massima di 3 MeV su un campione da 5". In base alla (2.3), si ottiene:

$$L = \frac{12.7}{2} \cot \alpha [H^+, 3MeV] = 360 \text{ cm}$$

Il calcolo della dose, cioè del numero di ioni impiantati nell'unità di superficie, si ottiene dalla misura della corrente del fascio. Prima di procedere all'impiantazione, si misura la carica integrata in un intervallo di tempo, normalizzata all'area del campione. Se le misure ripetute assicurano la stabilità della corrente del fascio, si procede all'impiantazione di una parte della dose da impiantare, basandosi sulla misura della corrente precedentemente effettuata. Si ripete poi una misura della corrente del fascio rimuovendo il campione per verificare la costanza della corrente o eventualmente correggere il calcolo della dose utilizzando il valore medio delle correnti prima e dopo

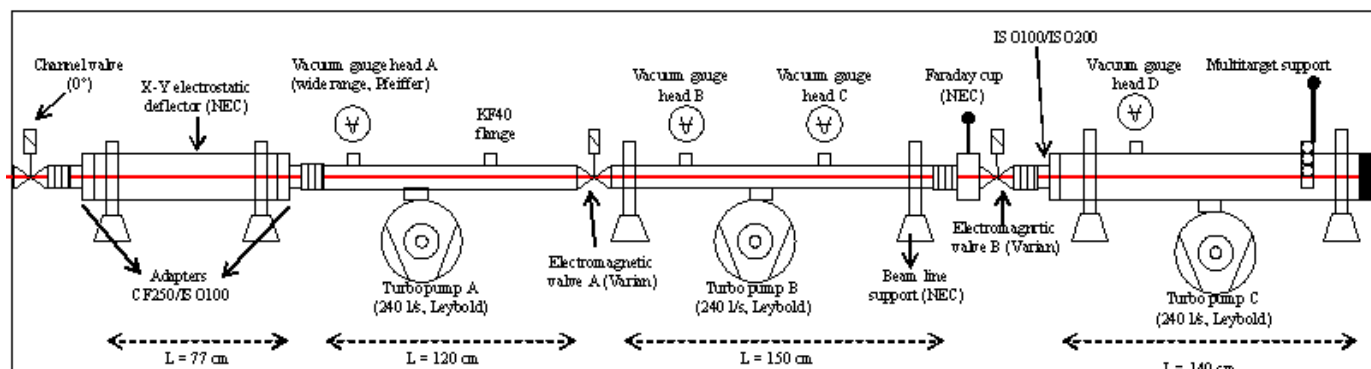


Figura 2.2: Schema della linea realizzata per l'impiantazione presso il laboratorio dell'acceleratore Tandem 3 MV del Dipartimento di Scienze Fisiche dell'Università Federico II di Napoli.

l'impiantazione. Si procede iterativamente in questo modo fino alla impiantazione della dose richiesta. La sensibilità della misura è legata alla bontà dell'isolamento elettrico della camera di impiantazione in cui si misura la corrente e all'errore di sensibilità dell'integratore di carica. La procedura approssimata descritta non permette di stimare l'errore di sensibilità della dose al di sotto del 10%.

In previsione degli sviluppi futuri, seguendo il modello già realizzato presso il DTL di Bochum, sarà predisposta una misura *on line* della corrente di ioni durante l'impiantazione tramite l'utilizzo di *corner Faraday cup*, ossia quattro piccole *Faraday cup* poste agli angoli del campione che permettano di monitorare la stabilità e l'uniformità del fascio durante l'impiantazione stessa.

2.2.2 La tecnica di misura del lifetime

La tecnica di misura del tempo di vita medio di ricombinazione si basa sul funzionamento di un dispositivo elettronico in silicio, la cui cella elementare è schematizzata in sezione nella Figura 2.3. Esso è realizzato a partire da uno strato in silicio di tipo n

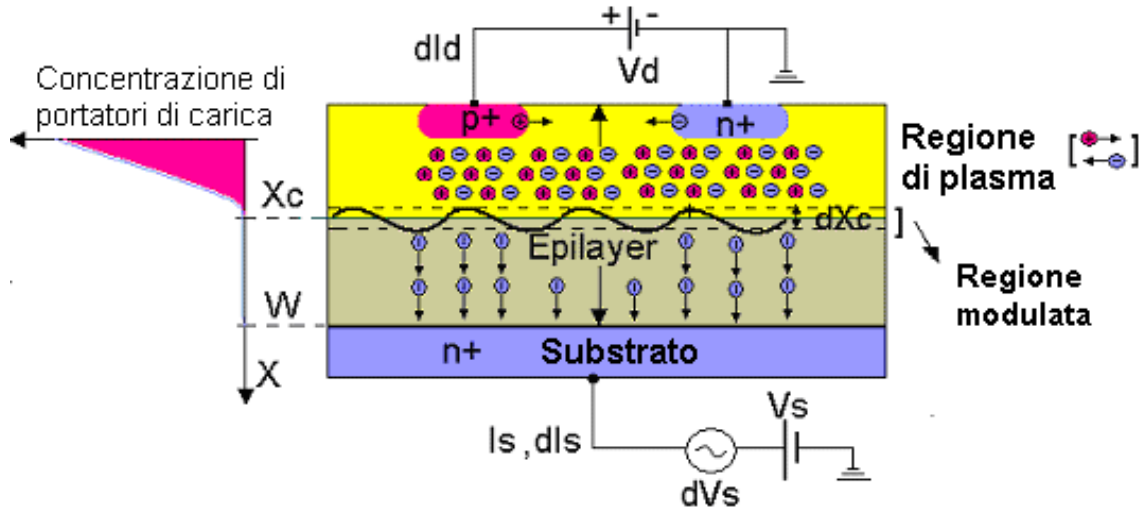


Figura 2.3: Schema della struttura di base del dispositivo messo a punto dal DIET [8]. La spiegazione dei singoli elementi è riportata nel testo.

([P] $\equiv N_d = 2 \times 10^{14}$ atomi/cm³) ottenuto per crescita epitassiale su un substrato di silicio fortemente drogato n⁺. Il drogaggio dello strato epitassiale (*epilayer*) è costante lungo tutto lo spessore $W \approx 60 \mu\text{m}$. In superficie, sono realizzate delle strisce drogate p⁺ alternate a strisce n⁺. Le strisce n⁺, così come quelle p⁺, sono collegate tra loro. Sono, infine, realizzati dei contatti ohmici in alluminio sulle strisce p⁺ e n⁺ e sul substrato per poter applicare tensioni e misurare le correnti indotte.

La struttura di test può essere vista come combinazione di due diodi: uno superficiale p⁺-n-n⁺ e uno verticale. Il diodo superficiale viene polarizzato direttamente applicando alle strisce p⁺, rispetto a quelle n⁺, una tensione V_d positiva che inietta portatori nell'*epilayer*. Tale tensione resta fissata durante la misura e definisce il livello di iniezione, ossia la concentrazione di portatori di carica minoritari iniettati nello strato n. La corrente che scorre lungo il diodo superficiale I_d è somma di vari contributi, come schematizzato in Figura 2.4:

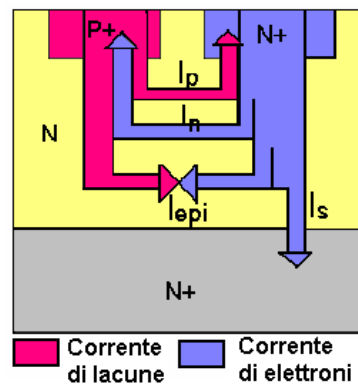


Figura 2.4: Schema delle correnti che si instaurano nel dispositivo per effetto della iniezione di portatori dovuta alla polarizzazione diretta del diodo superficiale p^+-n-n^+ .

- La corrente I_n di ricombinazione sulla superficie altamente drogata p^+ ;
- La corrente I_p di ricombinazione sulla superficie altamente drogata n^+ ;
- La corrente I_{epi} di ricombinazione nello strato epitassiale;
- La corrente di portatori che si ricombinano all'interfaccia tra l'*epilayer* ed il substrato;
- La corrente I_s di portatori che arriva al substrato.

Se si applica, inoltre, una tensione positiva V_s al substrato rispetto alla superficie, si crea un campo elettrico che tende a spingere i portatori di carica positiva verso la superficie. Lo strato epitassiale risulta così suddiviso in due regioni (si veda la Figura 2.3). La prima (quella verso la superficie) è detta regione di plasma, perché in essa si trovano sia portatori positivi, sia portatori negativi. Nella seconda scorrono, invece, solo portatori negativi attratti verso il substrato dal campo indotto dalla tensione V_s . La tensione V_s determina quindi lo spessore della regione di plasma X_c in cui avviene la ricombinazione. L'accuratezza nella determinazione della ascissa X_c è estremamente importante per la corretta estrazione del profilo di *lifetime* perché

a tale profondità riferiremo il valore della τ_r misurata. Inoltre, come vedremo più avanti, lo stesso valore di τ_r dipende dalla misura di X_c .

Per effetto della tensione V_s , la corrente di diodo risulta:

$$I_d = I_p + I_n + I_{epi} \quad (2.4)$$

perché le lacune si possono ricombinare solo nello strato epitassiale e sulle superfici altamente drogate del diodo superficiale. I valori I_p ed I_n sono legati solamente al valore del livello di iniezione; al contrario, la corrente I_{epi} dipende, oltre che dall'iniezione, anche dallo spessore della regione in cui le lacune si possono ricombinare.

Tale struttura può essere analizzata in base ad un modello monodimensionale nelle ipotesi seguenti:

- La componente della corrente di lacune che scorre lungo l'asse x (si veda la Figura 2.3) è trascurabile rispetto alla componente che scorre lungo l'asse ortogonale (che chiamiamo asse y), ossia le lacune scorrono prevalentemente nella direzione parallela alla superficie.
- La densità di lacune lungo l'asse y tra le strisce p^+ e n^+ è costante, ipotesi che si realizza quando la distanza tra le strisce è minore della lunghezza di diffusione dei portatori minoritari.

Tali ipotesi sono soddisfatte scegliendo opportunamente le dimensioni della struttura di test. In queste approssimazioni, la concentrazione dei portatori minoritari (lacune) lungo l'asse y è costante, cioè $p(0, y) = p_0$, ed è pari a quella che si ottiene sulla giunzione p^+-n . Il legame tra p_0 e la tensione V_d è:

$$V_d = V_{p+n} + V_{nn^+} = V_T \left[\ln \frac{p_0 N_d}{n_i^2} + \ln \left(1 + \frac{p_0}{N_d} \right) \right] \quad (2.5)$$

dove N_d è il drogaggio dello strato epitassiale, n_i è la concentrazione intrinseca di portatori e V_T è l'equivalente termico della temperatura, ossia $k_B T/q$, dove q è la

carica del portatore e T la temperatura dello strato. Dalla (2.5) si ottiene:

$$p_0 = -\frac{N_d}{2} + \sqrt{\left(\frac{N_d}{2}\right)^2 + n_i^2 e^{V_d/V_T}} \quad (2.6)$$

Da quest'ultima relazione si vede che l'unico parametro esterno che regola il livello di iniezione è la tensione di diodo superficiale V_d .

L'espressione della concentrazione delle lacune lungo l'asse x dipende dalla tensione V_s applicata al substrato. Essa può essere ottenuta risolvendo le equazioni di trasporto e di continuità [10] per elettroni e lacune, nelle ipotesi che la geometria sia monodimensionale e nelle condizioni di quasi neutralità elettrica nella regione di ricombinazione, cioè:

$$n \cong p + N_d \quad (2.7)$$

Si osservi che tutti i risultati riportati di seguito derivano dalla ipotesi che il drogaggio N_d dell'*epilayer* resti costante. Anticipiamo qui che in seguito all'impiantazione la resistività del materiale non è più uniforme; come conseguenza, alcuni portatori sono intrappolati ed il drogaggio effettivo viene alterato. Vedremo nel §2.3 in che modo ricalcolare il profilo di *lifetime* per tenere conto di questa alterazione.

La concentrazione delle lacune, nelle ipotesi di drogaggio dell'*epilayer* costante, risulta:

$$p(x) = p_0 \left[1 - \frac{x}{x_c} \left(1 + \frac{1}{2P_0} \right) - \frac{1}{2P_0} \ln \frac{p(x)}{p_0} \right] \quad (2.8)$$

dove $P_0 = p_0/N_d$ è il livello di iniezione normalizzato alla concentrazione del drogante, x_c è l'intersezione della tangente alla distribuzione di lacune in $x=0$ con l'asse x . Ad alti livelli di iniezione, cioè per $P_0 > 1$, la distribuzione è lineare: $p(x) = p_0(1 - x/x_c)$. Per bassi livelli ($P_0 < 1$), l'andamento è, invece esponenziale: $p(x) = p_0 e^{-x/x_c}$. Inoltre, l'espressione generale dell'ascissa x_c risulta [10]:

$$x_c = q \frac{D_n p_0 A}{I_s} \left(2 + \frac{1}{P_0} \right) \quad (2.9)$$

La conoscenza di $p(x)$ è di grande importanza nella comprensione della struttura visto che la corrente nell'*epilayer* è:

$$I_{epi} = qA \int_0^W \frac{p(x)}{\tau(x)} dx \quad (2.10)$$

dove A è l'area della regione di ricombinazione, W è lo spessore dell'*epilayer* e $\tau(x)$ è il *lifetime* di ricombinazione alla profondità x .

Applichiamo ora una tensione alternata v_s che si somma alla tensione di controllo continua V_s ⁽²⁾. La dimensione della regione di plasma, che è controllata dalla tensione di substrato, subirà una modulazione, cioè la regione di ricombinazione oscillerà intorno al valore X_c di una quantità dX_c (si veda la Figura 2.3). Tra le componenti della corrente di diodo superficiale I_d , la corrente I_{epi} è la sola che dipende da tale oscillazione. La componente alternata i_d che si induce sarà quindi funzione della ricombinazione nello strato $X_c \pm dX_c$.

Le grandezze elettriche misurate sono:

- V_d , in base alla quale si determina il livello di iniezione;
- V_s e I_s che determinano la posizione della misura del *lifetime* X_c ;
- i_d , i_s e v_s per ricavare $\tau(X_c)$.

In Appendice A, sono riportati i passaggi che permettono di scrivere l'espressione di X_c e $\tau(X_c)$ in base alle quantità determinate sperimentalmente:

$$\begin{aligned} X_c &= 2 \frac{W(1 + P_0)}{V_s/V_T + 2(1 + P_0)} \\ \tau(X_c) &= \frac{X_c}{D_n \left(2 + \frac{1}{P_0}\right)} \left[\frac{d}{dx} \left(\frac{dI_d}{dI_s} \right)^{-1} \right] \end{aligned} \quad (2.11)$$

dove P_0 è il livello di iniezione normalizzato, W lo spessore dell'*epilayer*, V_T l'equivalente termico della temperatura e D_n è il coefficiente di diffusione degli elettroni. Tali

²Le grandezze alternate saranno indicate con la lettera minuscola (i , v) e quelle continue con la maiuscola (I , V).

espressioni sono ricavate nelle ipotesi di alte iniezioni, ossia per $P_0 > 1$, condizione realizzata in tutte le misure riportate in questo lavoro.

L'acquisizione del profilo del *lifetime* avviene attraverso una catena di misura descritta in [10] che è stata automatizzata, nell'ambito di questo studio, tramite un programma realizzato su piattaforma Labview (NI). Una volta fissato il livello di iniezione, ossia la tensione V_d , si procede all'acquisizione del profilo di *lifetime* applicando una tensione $V_s(i)$ variabile con un passo maggiore o circa uguale della dimensione della fluttuazione della regione di plasma. In questo modo, ad ogni passo, si acquisiscono i parametri elettrici elencati in precedenza, il programma Labview elabora i valori X_c e $\tau(X_c)$ e viene automaticamente visualizzato il valore del *lifetime* relativo al passo $V_s(i)$.

2.3 Ottimizzazione della misura

I risultati dei profili del *lifetime* che saranno mostrati in seguito sono il risultato di un intenso lavoro di ottimizzazione della tecnica di misura. Sebbene l'effetto dell'impiantazione fosse ben evidente sin dai primi risultati che abbiamo ottenuto [12] [13], i profili misurati esibivano sensibili discrepanze con i calcoli di TRIM e mostravano una larghezza della curva molto più grande della larghezza del danneggiamento atteso. Inoltre, non era possibile osservare nessuna struttura nei profili per impiantazioni con dosi superiori a 1×10^{11} ioni/cm², come si vede dal profilo mostrato in Figura 2.11.

Al fine di chiarire l'origine delle discrepanze tra i risultati delle misure di *lifetime* ed i calcoli microscopici del danneggiamento, abbiamo intrapreso uno studio sistematico delle caratteristiche della struttura di test.

Composizione dei dispositivi di test - Misure RBS La prima indagine volta ad ottimizzare la precisione della misura è stata condotta sulla struttura fisica del dispositivo. La presenza, infatti, di contatti ohmici realizzati in alluminio, il cui spessore non era noto con precisione, comportava una indeterminazione sui parametri di

input per il simulatore TRIM utilizzato per calcolare la perdita di energia e stimare la distribuzione del danno attesa. Durante l'impiantazione, infatti, alcuni ioni raggiungono direttamente lo strato di silicio, altri devono attraversare prima lo strato di alluminio del contatto ohmico. A parità di energia incidente, il percorso di questi ultimi nel silicio è minore rispetto ai primi di una quantità di poco inferiore allo spessore di alluminio attraversato (la perdita di energia nell'Al è, infatti, poco più piccola di quella del Si). Per spessori di alluminio dell'ordine dei μm , questa struttura avrebbe comportato un allargamento considerevole della larghezza della distribuzione del danno.

Sono state quindi realizzate misure Rutherford Back Scattering per stimare la composizione dei primi μm di spessore del dispositivo. Scansionando la superficie, è stato possibile misurare la composizione della struttura del dispositivo, la quale è riportata in Figura 2.5. Gli spessori misurati di alluminio sono stati utilizzati nelle simulazioni TRIM per il calcolo della distribuzione del danno indotto dall'impiantazione su tale struttura.

Variazione del drogaggio efficace Una volta escluso che la larghezza della curva di *lifetime* potesse avere un'origine di tipo "fisico", sono state studiate in dettaglio le modifiche di alcune caratteristiche elettriche del dispositivo prodotte dall'impiantazione. E' stato osservato, infatti, che i dispositivi sottoposti ad impiantazione di He esibiscono una variazione della concentrazione efficace di portatori nell'*epilayer*. E' stato evidenziato, infatti, un aumento della resistività in prossimità del picco di danneggiamento tramite la tecnica standard di misura della resistenza differenziale Spreading Resistance Profiling (SRP). Tale tecnica è di tipo distruttivo, cioè prevede il taglio del campione ad un angolo sufficientemente piccolo da poter ricavare, in base a misure elettriche di tipo I-V, il profilo in profondità della resistività con una accuratezza $\approx 0.5 \mu\text{m}$.

In Figura 2.6 sono mostrate le misure SRP di tre dispositivi impiantati con He con energie $E=5.7$ e 5.8 MeV e dosi 1×10^{10} , 1×10^{11} e 2×10^{11} ioni/ cm^2 eseguite dalla società Semiconductor Assessment Services Ltd (Bucks, United Kingdom). La misura

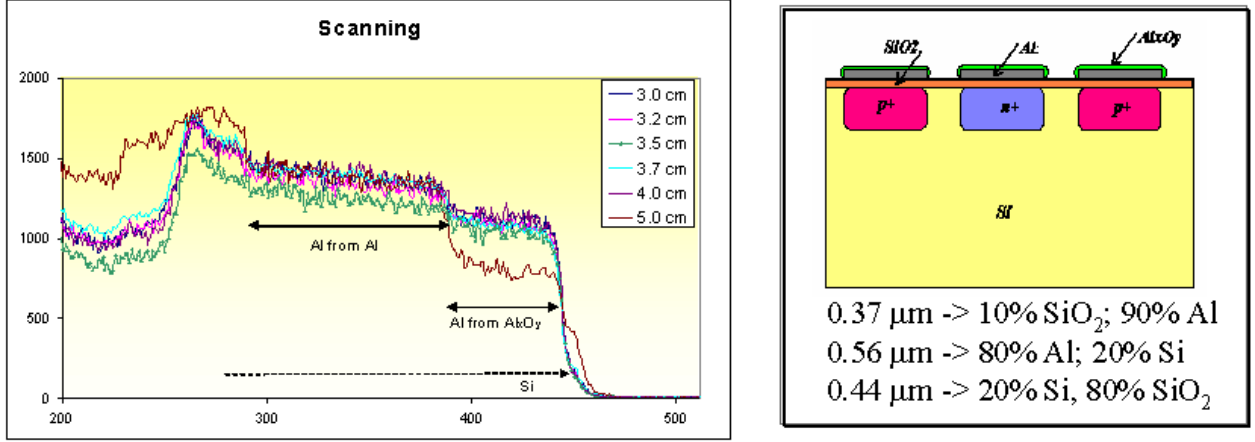


Figura 2.5: Risultati delle misure Rutherford Back Scattering effettuate sui dispositivi di test utilizzati per le misure di *lifetime*. La figura a sinistra mostra gli spettri RBS ottenuti variando la posizione di incidenza del fascio di He sulla superficie del dispositivo. La figura a destra riporta la composizione fisica del dispositivo ricavata da tali misure. L'analisi RBS è stata effettuata presso il DTL della Università della Ruhr di Bochum (Germania).

SRP determina il profilo di resistività $\rho(x)$ del campione, ma passando attraverso la mobilità degli elettroni μ_n , si può stimare la concentrazione di portatori, tramite la:

$$\rho(x) = \frac{1}{\mu_n q n(x)} \quad (2.12)$$

dove q e $n(x)$ sono rispettivamente la carica e la concentrazione degli elettroni alla profondità x . Come si vede, l'impiantazione produce un danneggiamento, che qui misuriamo in termini di alterazione della resistività³ localizzato ad una profondità $\approx 2-3 \mu\text{m}$ inferiore al *range* degli ioni (che vale $30 \mu\text{m}$). Torneremo in seguito su tale risultato, interpretandolo insieme agli altri dati sperimentali ottenuti sul danneggiamento.

L'alterazione del drogaggio efficace comporta un problema nella analisi del profilo del *lifetime* descritto finora. Infatti, la corretta determinazione di X_c e $\tau(X_c)$ si

³Si ricordi che la concentrazione di elettroni nel dispositivo non impiantato è pari al drogaggio dell'*epilayer* $N_d = 2 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$.

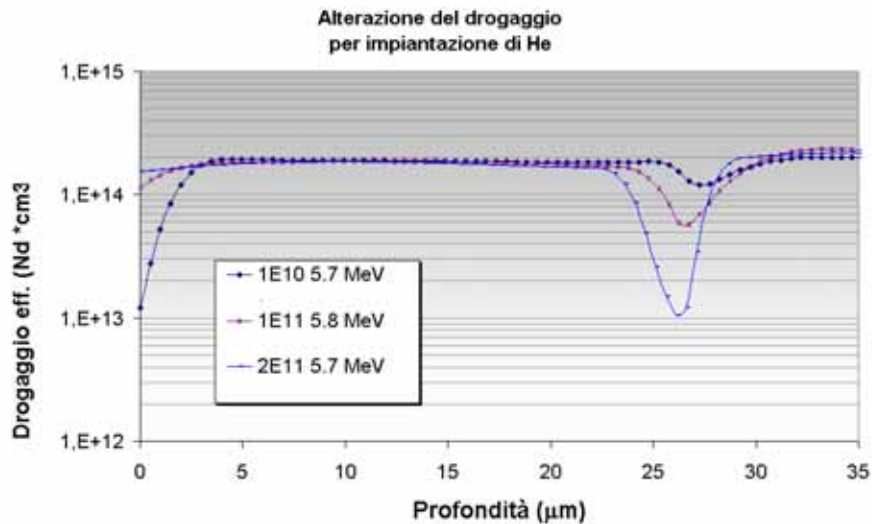


Figura 2.6: Misure SRP in termini di concentrazione di drogaggio efficace di tre dispositivi impiantati in He di energie pari a 5.7 e 5.8 MeV con dosi 1×10^{10} , 1×10^{11} e 2×10^{11} ioni/cm² (Società Semiconductor Assessment Services Ltd - Bucks - United Kingdom).

basa sull'ipotesi che il drogaggio dell'*epilayer* sia costante. I dati ottenuti vanno quindi rielaborati per tener conto di questa modificazione indesiderata introdotta dall'impiantazione.

In questo lavoro è stato messo a punto un algoritmo che permetta di ricavare la distribuzione di drogaggio efficace da misure effettuate direttamente sul dispositivo di test, tramite la quale abbiamo potuto correggere i profili di *lifetime* presentati in questo lavoro.

Il nuovo calcolo della profondità X_c La tecnica di misura del *lifetime* si basa sulla possibilità di determinare la posizione X_c sulla base della tensione di controllo V_s . La tensione V_s , come già detto, divide l'*epilayer* nella regione di plasma, in cui la resistività è trascurabile, e la regione in cui sono presenti solo portatori di carica negativi (regione di *drift*). La posizione alla quale si realizza la transizione tra le

due regioni è la X_c alla quale riferiamo il valore della τ misurata. La resistenza dell'*epilayer* R_c coincide con la resistenza della regione di *drift* per cui:

$$R_c = \int_{X_c}^W \frac{1}{q\mu_n n(x)} \frac{dx}{A} = \frac{1}{q\mu_n A} \int_{X_c}^W \frac{dx}{n(x)} = \frac{V_s}{I_s} \quad (2.13)$$

La posizione X_c che si ottiene per una data tensione V_s è:

$$X_c = \frac{V_T}{V_s} \frac{p_0}{P_0} 2(1 + P_0) \int_{X_c}^W \frac{dx}{n(x)} \quad (2.14)$$

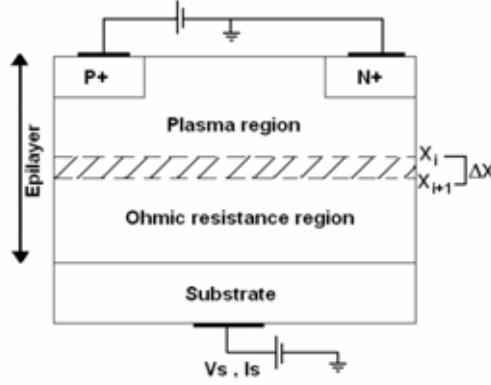


Figura 2.7: Schema della tecnica utilizzata per la misura del profilo di drogaggio a partire dalla caratteristica $I_s - V_s$ del dispositivo di test.

Se $n(x) = \text{const}$, si ottiene l'espressione riportata a pag 41. La procedura messa a punto nel caso in cui $n(x)$ non sia costante, parte dalle misure ai tre terminali del dispositivo. Applicando la stessa tensione di diodo superficiale utilizzata nella misura del *lifetime*, ossia iniettando lo stesso numero di portatori minoritari nell'*epilayer*, si misurano le caratteristiche $I_s - V_s$ del diodo verticale. Per determinare la resistenza ΔR dell'elemento ΔX (Figura 2.7), bisogna valutare la corretta posizione dell'ascissa X_c . Per fare questo partiamo dalla espressione dell'ascissa ricavata nelle ipotesi di drogaggio costante e associamo ad ogni i -esima coppia $(I_s; V_s)_i$ la relativa $X_c(i)$. Definiamo poi la resistenza differenziale della regione $\Delta X = [X_c(i), X_c(i+1)]$ come:

$$R_{diff} = R(i+1) - R(i) = \frac{V_s(i+1)}{I_s(i+1)} - \frac{V_s(i)}{I_s(i)} \quad (2.15)$$

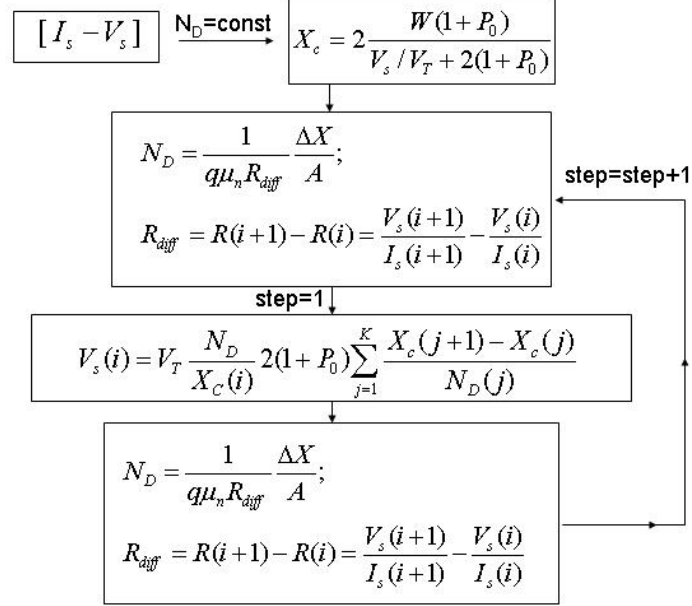


Figura 2.8: Algoritmo utilizzato per la determinazione del drogaggio efficace a partire dalla misura della caratteristica del diodo verticale $I_s - V_s$ per una fissata iniezione.

dalla quale il valore medio del drogaggio della regione ΔX è:

$$N_D = \frac{1}{q\mu_n R_{diff}} \frac{\Delta X}{A} \quad (2.16)$$

Naturalmente la cattiva stima di X_c comporta una non corretta determinazione di $N_D(x)$. E' stato messo a punto, quindi, l'algoritmo riportato in Figura 2.8 in cui l'integrale dell'equazione (2.14) viene calcolato in maniera approssimata come somma dei termini $\Delta X_c(i)/N_D(i)$, ossia:

$$X_c = \frac{V_T p_0}{V_s P_0} (2 + P_0) \sum_{j=1}^k \frac{X_c(j+1) - X_c(j)}{N_D(j)} \quad (2.17)$$

Da questa equazione, a partire dalle coppie $[X_c(i); N_D(X_c(i))]$ si ottengono nuove

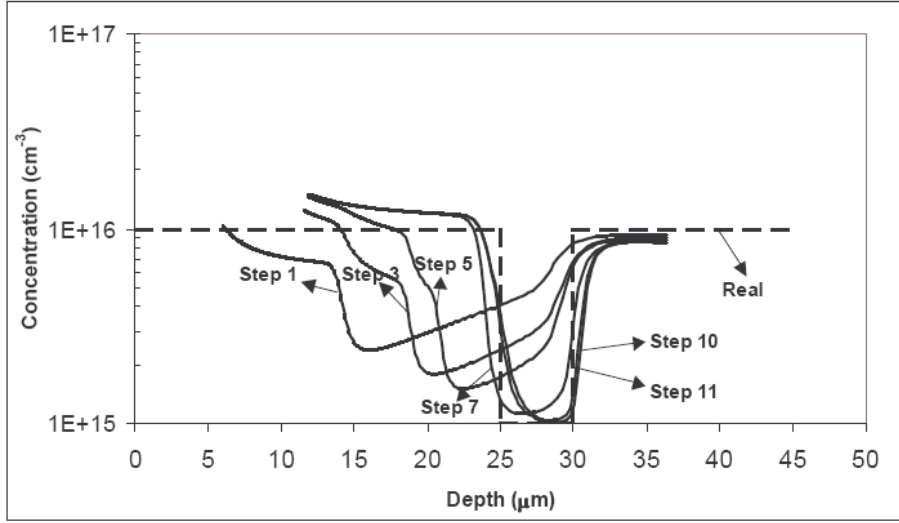


Figura 2.9: I vari passi della procedura iterativa messa a punto per la determinazione del profilo di drogaggio efficace. Le curve sono il risultato di una simulazione del dispositivo effettuata con il programma ATLAS al quale è stata data in ingresso una alterazione del drogaggio a gradino. La curva converge alla forma impostata entro pochi cicli.

tensioni $V_s(i)$ cui riferire le ascisse $X_C(i)$:

$$V_s(i) = V_T \frac{N_D}{X_C(i)} 2(1 + P_0) \sum_{j=1}^k \frac{X_c(j+1) - X_c(j)}{N_D(j)} \quad (2.18)$$

Il processo viene iterato finché la soluzione non si stabilizza. In Figura 2.9 sono mostrati i vari cicli dell'algoritmo ottenuti tramite una simulazione ATLAS [19] del dispositivo di test, in cui è stata ipotizzata una variazione della concentrazione di portatori $N_D(x)$ a gradino. Come si vede, la concentrazione di portatori tende dopo pochi cicli alla distribuzione impostata in input al simulatore.

Il confronto tra le due tecniche è mostrato in Figura 2.10, in cui è riportato il drogaggio efficace simulato con ATLAS tramite questa procedura per le dosi 1×10^{11} e 2×10^{11} ioni/cm² e la misura SRP di un campione con dose 2×10^{11} ioni/cm². Sebbene la risoluzione del secondo metodo sia inferiore, essa può essere utilizzata per stimare

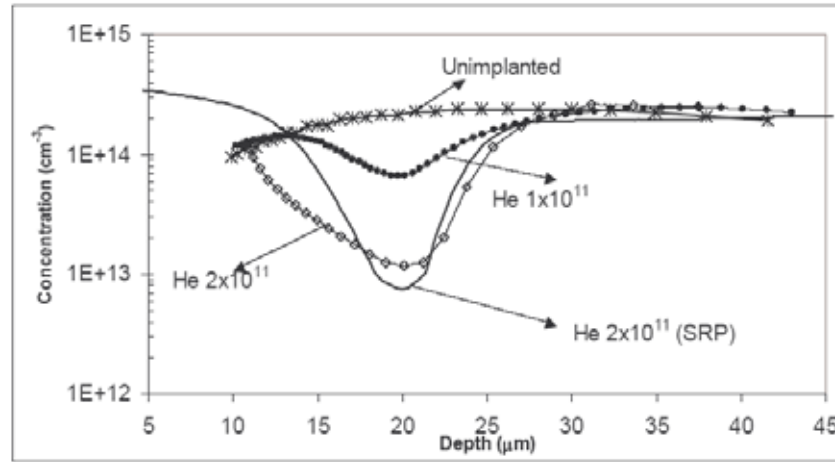


Figura 2.10: Sono riportati i profili di drogaggio efficace misurati in base alla procedura illustrata nel testo per un campione non impiantato e per due dispositivi impiantati con 4.4 MeV di He con dosi 10^{11} e 2×10^{11} ioni/cm². Inoltre, è riportato il profilo di drogaggio misurato con la tecnica SRP.

in prima approssimazione l'alterazione del drogaggio efficace dovuto all'impiantazione.

Applicando tale correzione alla misura del profilo di *lifetime*, la tecnica si è rivelata estremamente più precisa. Un esempio evidente è mostrato in Figura 2.11. In verde, è riportato il profilo di *lifetime* misurato senza alcuna correzione, in cui non si evidenzia la localizzazione del danno indotto dalla impiantazione con He di energia $E=5.7$ MeV e dose 2×10^{11} ioni/cm². La curva in rosa è stata corretta tramite il metodo iterativo descritto prima, mentre la curva blu utilizza il profilo di drogaggio efficace misurato tramite SRP. La risoluzione che si riesce ad ottenere in questo ultimo caso è superiore al metodo di tipo elettrico proposto, indicando che la misura del drogaggio efficace effettuata direttamente sul dispositivo deve essere ulteriormente ottimizzata, al fine di ottenere un metodo di misura completamente autoconsistente.

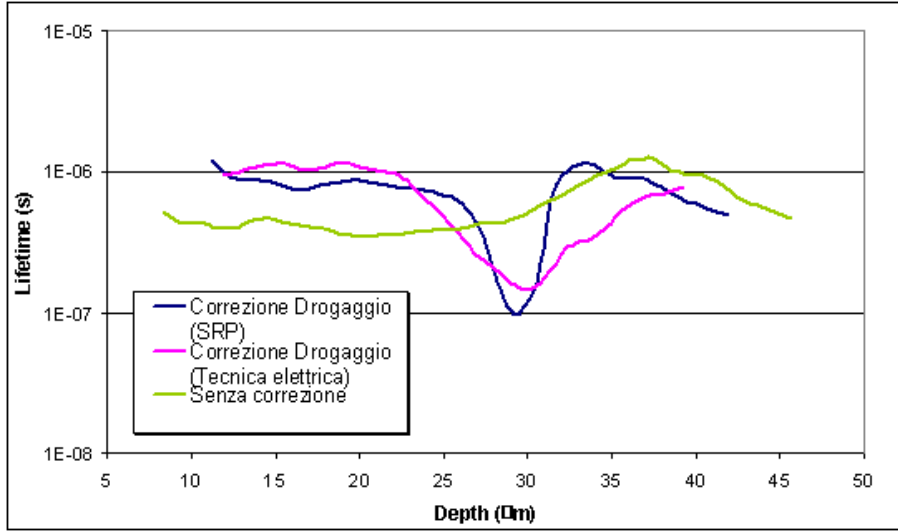


Figura 2.11: Sono confrontate le misure dei profili di *lifetime*. In verde è riportato il profilo di un dispositivo impiantato con He di energia 5.7 MeV e dose 2×10^{11} ioni/cm² senza applicare alcuna correzione al profilo di drogaggio efficace; in rosa, lo stesso profilo è corretto considerando la variazione del drogaggio misurata direttamente sul campione con misure $I_s - V_s$; in blu, il profilo è corretto con la misura del drogaggio efficace SRP.

2.4 Risultati sperimentali

I profili di *lifetime* misurati per i dispositivi impiantati con parametri di impiantazione della Tabella (2.2) sono mostrati nelle Figure (2.12) e (2.13). Tutte le misure sono state ottenute a temperatura ambiente ed in condizioni di alte iniezioni $P_0=30$. Inoltre, tali profili sono stati rielaborati per tener conto della alterazione del drogaggio tramite la procedura iterativa messa a punto in questo lavoro. La stabilizzazione del danno è stata ottenuta o per *annealing* termico a 200°C per ≈ 2 ore, o tramite la saldatura a caldo dei dispositivi per ottenere le connessioni elettriche necessarie per la misura di *lifetime*. E' stato verificato, infatti, che le curve di *lifetime* risultano stabili in seguito alla saldatura a caldo e l'effetto è equivalente a quello che si ottiene in seguito all'*annealing*.

Il profilo di *lifetime* misurato su un dispositivo non impiantato è costante e pari a $\approx 10^{-4}$ s. L'effetto dell'impiantazione è quindi ben visibile nelle Figure (2.12) e (2.13). In particolare, la Figura 2.12 mostra che all'aumentare dell'energia di impiantazione la larghezza della curva del *lifetime* aumenta; questo è compatibile con l'allargamento della distribuzione del danneggiamento all'aumentare della energia di impiantazione a causa dello *straggling* del fascio. La Figura 2.13 evidenzia invece come al crescere della dose aumenti l'intensità del danneggiamento. Tutti questi risultati spingono a ipotizzare una relazione molto stretta tra la distribuzione del danneggiamento secondario stabile e introduzione di centri efficaci per la ricombinazione.

Discussione La scelta operata in questo studio di utilizzare ioni di He per indurre il danneggiamento è dettata da due principali argomentazioni:

1. L'elio è un gas inerte e come tale una volta impiantato non si lega chimicamente nel mezzo. Il danno provocato dall'elio è particolarmente semplice da studiare, perché esso è dovuto alla rottura della struttura reticolare del silicio (coppie V-I) e non ai legami chimici che lo ione impiantato può formare nel mezzo.
2. I difetti creati dal bombardamento di He delle energie dei MeV nel silicio è stato molto ben caratterizzato nel corso degli ultimi anni, sia per l'interesse suscitato in ambito applicativo di cui parleremo alla fine di questo capitolo, sia per lo sviluppo di tecniche particolarmente sensibili, come la DLTS (Deep-Level Transient Spectroscopy).

La Figura 2.14 mostra il confronto qualitativo del profilo di *lifetime* (rielaborato utilizzando il profilo di drogaggio efficace misurato con la tecnica SRP) con la distribuzione delle vacanze simulate con TRIM. E' riportata, inoltre, la distribuzione dell'energia depositata per ionizzazione. Per la simulazione sono stati utilizzati gli input fisici ottenuti dalle misure RBS del dispositivo. La corrispondenza tra la posizione e la forma del minimo del *lifetime* con il picco di lacune evidenzia che i difetti che

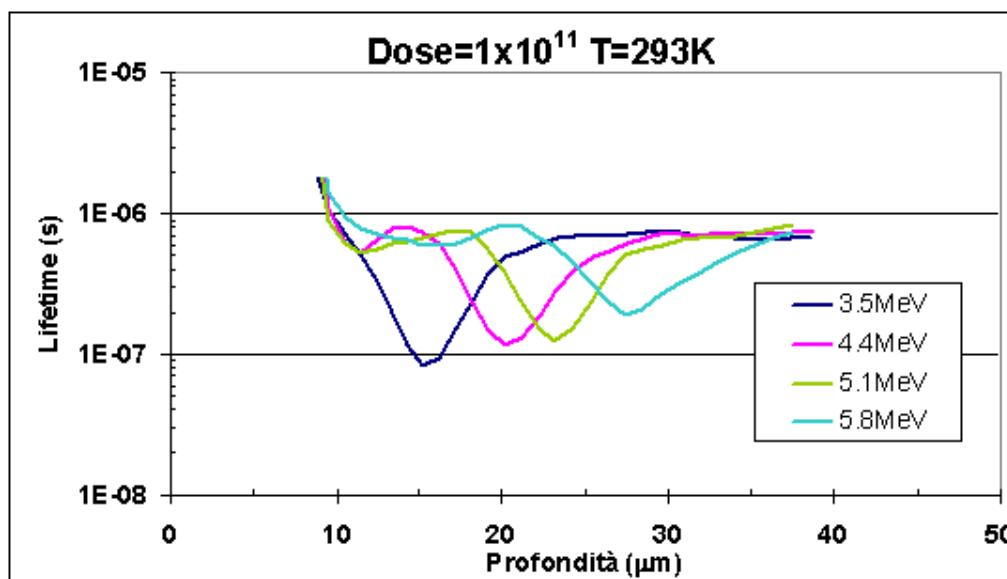


Figura 2.12: Profili del lifetime di ricombinazione per dispositivi impiantati con He a varie energie di impiantazione.

assistono la ricombinazione sono connessi alla presenza di vacanze. L'accordo tra la posizione del minimo del *lifetime* e quella del picco delle lacune simulate con TRIM costituisce, per questo caso particolare, una conferma indiretta della bontà del potenziale di *screening* universale Φ_U [1] mostrato in Figura 1.3, in base al quale viene calcolato lo *stopping power* nucleare, responsabile della distribuzione delle vacanze primarie e, quindi, del danneggiamento.

E' noto [5] [18] che il difetto maggiormente presente in seguito ad impiantazioni di basse dosi di He è la divacanza V_2 . Tale difetto è stato studiato negli ultimi trent'anni tramite varie tecniche di tipo ottico-elettrico (PL, CV, DLTS) e atomico-nucleare (Electron-Paramagnetic Resonance, Positron-Annihilation Spectroscopy). Le coppie di Frenkel che vengono prodotte per interazione diretta con lo ione di He o all'interno di singole cascate tendono velocemente a ricombinarsi a causa della forte instabilità a temperatura ambiente. Solo una frazione dell'ordine di 10^{-2} del numero di vacanze primarie sfugge alla ricombinazione e tende ad accoppiarsi per formare la struttura

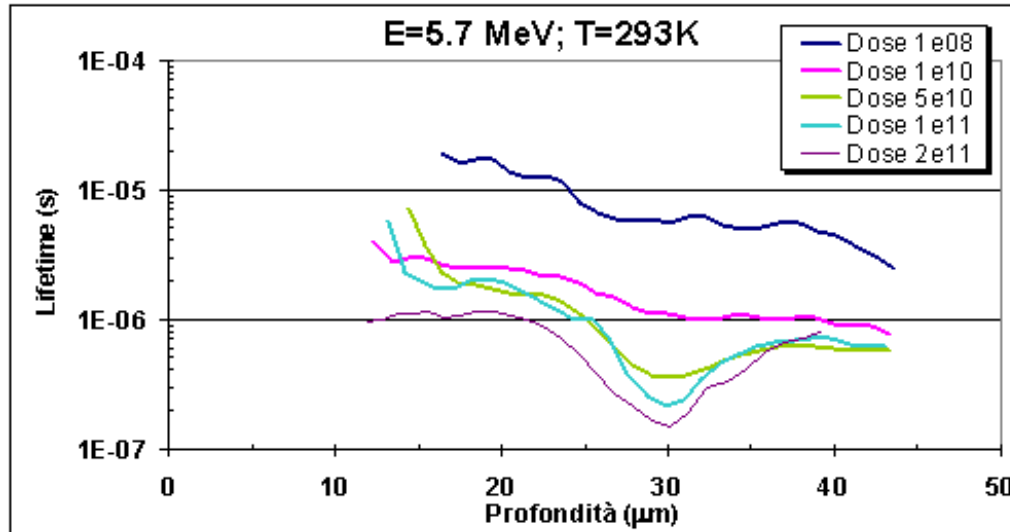


Figura 2.13: Profili del *lifetime* di ricombinazione per dispositivi impiantati con He alla profondità di 30 μm , al variare della dose.

stabile V_2 .

La divacanza risulta stabile a temperatura ambiente e scompare in seguito ad *annealing* a temperatura $\approx 250\text{-}300\text{ }^\circ\text{C}$ (si veda la Figura 1.10). Tale difetto può esistere nei tre stati di carica V_2^{2-} , V_2^- e V_2^+ , ognuno con una particolare energia all'interno della *bandgap* del silicio, diffusività e sezione d'urto di cattura. Confronteremo le energie dei livelli di ricombinazione ottenuti dalle misure di *lifetime* con i dati DLTS delle energie delle divacanze noti in letteratura.

Analisi in temperatura Il profilo di *lifetime* è stato analizzato al variare della temperatura. Una volta fissata la profondità alla quale riferire tutte le misure, dal fit dei valori di *lifetime* in funzione della temperatura è possibile estrarre l'energia del centro di ricombinazione nella *bandgap* del silicio [10]. Infatti, la probabilità $P(E_t)$ di occupazione di un livello energetico E_t alla temperatura T è data dalla distribuzione

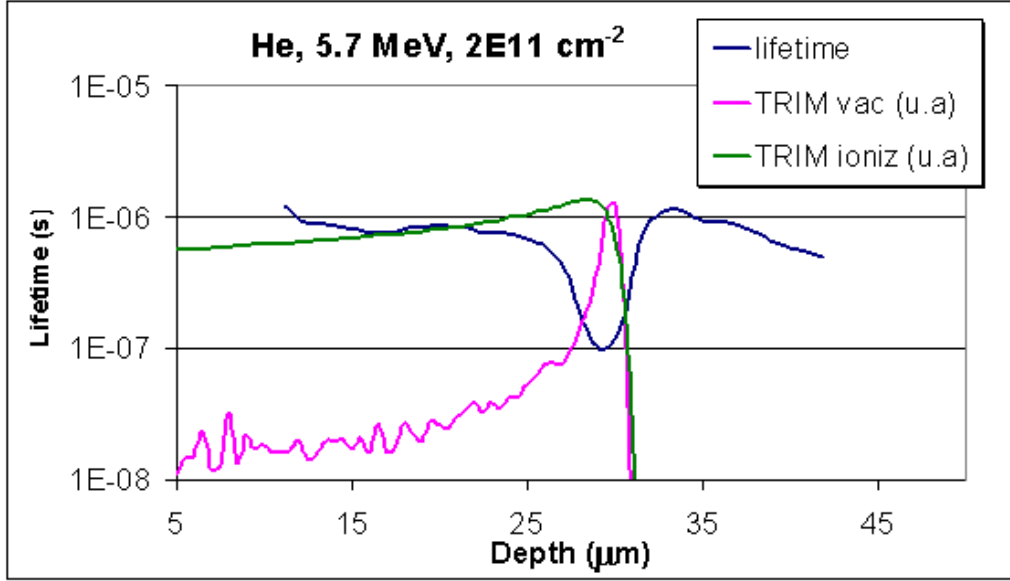


Figura 2.14: Profilo del *lifetime* di ricombinazione di un dispositivo impiantato con He con dose 2×10^{11} ioni/cm² in funzione della profondità confrontato con le distribuzioni delle vacanze e dell'energia elettronica depositata (in unità arbitrarie) simulate con TRIM.

di Fermi-Dirac:

$$P(E_t) = \frac{1}{1 + e^{\frac{E_t - \mu(T)}{k_B T}}} \quad (2.19)$$

dove $\mu(T)$ è il potenziale chimico che diminuisce all'aumentare della temperatura. Quando $\mu(T) < E_t$, la probabilità di occupazione del livello E_t va rapidamente a zero e non è più efficace per la ricombinazione. In termini di misura di *lifetime*, questa condizione si traduce in un aumento della τ_r alla temperatura in cui il centro viene disattivato. Un esempio di questa analisi è mostrato in Figura 2.4 in cui è graficato il prodotto ($\tau_r \times \sqrt{T}$) in funzione di $(1/T \times 10^3)$ (noto come diagramma di Arrhenius). Dal fit di questi dati, si può estrarre l'energia del centro di ricombinazione che si è disattivato.

I risultati ottenuti dall'analisi in temperatura dei dispositivi impiantati con He sono mostrati in Figura 2.16 insieme al confronto con i dati DLTS delle energie delle

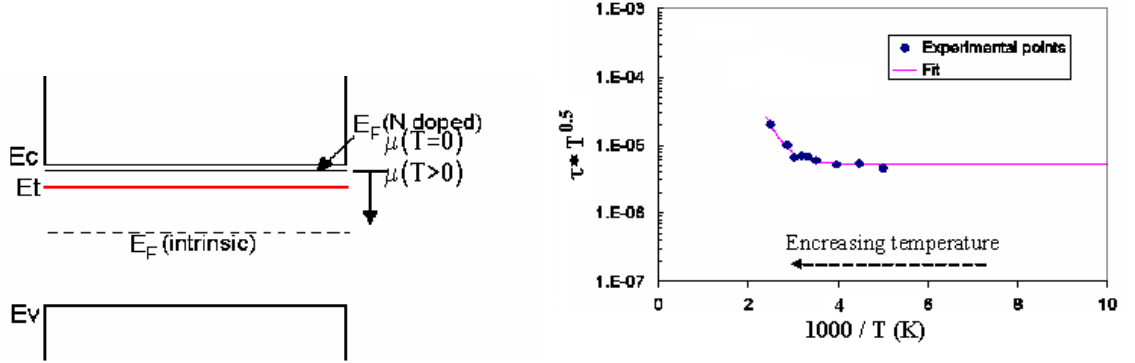


Figura 2.15: Schema dei livelli in un semiconduttore di tipo n con un difetto E_t . Arrhenius plot di un dispositivo impiantato con He con $E=4.4$ MeV e dose 1×10^{11} ioni/cm². Le misure sono relative ad una fissata profondità di $20 \mu\text{m}$., ossia nella posizione del massimo danneggiamento.

divacanze V_2^{2-} , V_2^- e V_2^+ . Il centro dominante si localizza nella regione del minimo del *lifetime*, ossia nella regione del massimo danneggiamento, ed è $E_c - 0.23(\pm 0.01)$ eV, che può essere interpretato come la divacanza doppio accettore V_2^{2-} . Si osserva inoltre un livello $E_v + 0.21(\pm 0.03)$ eV che può essere interpretato come divacanza donore V_2^+ . Infine, il difetto $E_c - 0.56$ eV può essere invece attribuito ad un cluster di vacanze [11]. Tali risultati sono stati pubblicati in [12].

Dal confronto mostrato in Figura 2.14 e dalle energie estratte dall'analisi in temperatura, possiamo concludere che il danneggiamento indotto dall'impiantazione è connesso alla presenza di divacanze stabili a temperatura ambiente. La curva di *lifetime* può quindi essere interpretata qualitativamente come la forma della distribuzione delle divacanze che si sono create in seguito all'impiantazione.

A completare lo studio del danneggiamento prodotto dal bombardamento di He, merita attenzione l'alterazione della resistività osservata in seguito all'impiantazione. Dall'analisi in temperatura del prodotto $R\mu$ dove μ è la mobilità degli elettroni, si vede che per temperature superiori ai 350 K, tutti i campioni esibiscono lo stesso valore $R\mu$. Queste due osservazioni inducono ad ipotizzare che l'alterazione della resistività sia dovuta ad un diverso tipo di difetto introdotto dall'impiantazione, che funge da trappola per gli elettroni (fatto che spiega la diminuzione degli elettroni disponibili

per la conduzione, e quindi, del drogaggio efficace). Inoltre, a livello microscopico, tali difetti devono trovarsi vicino alla banda di conduzione (difetti *shallow*), visto che tali trappole vengono disattivate per temperature superiori a 350°K.

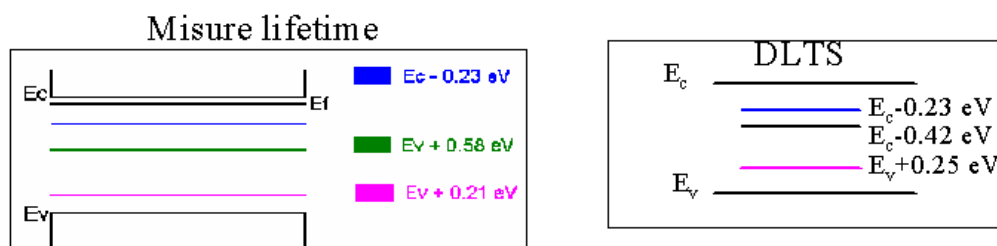


Figura 2.16: Sono mostrate le energie dei centri di ricombinazione ottenute dall'analisi in temperatura delle curve di *lifetime* ed i valori di letteratura misurati con la tecnica DLTS.

2.4.1 Applicazione ai diodi di potenza.

I risultati sul danneggiamento indotto dal bombardamento di He delle energie dei MeV nel silicio hanno trovato applicazione nel campo dell'ottimizzazione del processo produttivo dei diodi di potenza. Tali diodi sono utilizzati in commercio prevalentemente come interruttori. Nello stato ON, il diodo è portato in conduzione, mentre nello stato OFF la tensione ai suoi capi viene invertita ed il diodo passa in interdizione, aprendo il circuito nel quale è inserito. In conduzione le correnti sono in genere molto intense e, per evitare cadute ohmiche elevate, in fase di progettazione la resistenza del diodo deve essere contenuta. Durante la fase di commutazione ON→OFF, il diodo non può passare istantaneamente alla fase di interdizione perché deve smaltire la gran quantità di portatori iniettata attraverso la giunzione in conduzione. Quando si inverte la tensione, quindi, il diodo esibirà un picco di corrente inversa che tenderà a

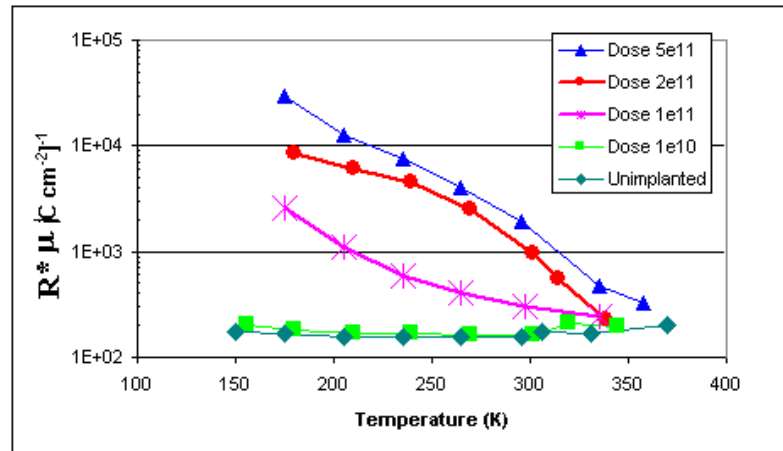


Figura 2.17: Andamento del prodotto della resistenza R per la mobilità μ al variare della temperatura del dispositivo dei campioni impiantati con He a varie dosi.

zero con i tempi caratteristici della ricombinazione⁴. La Figura 2.18 mostra l'andamento della corrente di un diodo commerciale nella fase di *switching*. Per velocizzare il tempo di commutazione, il *lifetime* di ricombinazione dovrebbe essere più basso possibile. I metodi standard per il controllo del *lifetime* modificano uniformemente il materiale tramite la diffusione di impurezze di Au o Pt oppure tramite l'irraggiamento di elettroni. Se da una parte tali metodi diminuiscono efficacemente il *lifetime* di ricombinazione, dall'altra essi producono un aumento di resistività diffuso in tutto il materiale che si traduce in una maggiore caduta ohmica in conduzione e, quindi, in un aumento della potenza dissipata.

L'impiantazione ionica invece è in grado di modificare la struttura del diodo, in modo da ridurre il tempo di ricombinazione solo nella regione di interesse, vale a dire, laddove si presenta l'accumulo di portatori minoritari [14] [15]. In collaborazione con l'azienda IRCI, filiale italiana della International Rectifier, produttrice mondiale di diodi di potenza, parallelamente agli studi sul danneggiamento, sono state realizzate impiantazioni di He in varie posizioni in prossimità della giunzione e con differenti

⁴Questa affermazione è valida se è possibile trascurare le capacità introdotte dagli strumenti di misura.

dosi. Alcuni risultati sono mostrati in Figura 2.18. Le curve di Reverse Recovery mostrano come il picco di corrente inversa ed il tempo di commutazione diminuiscano in seguito alle impiantazioni localizzate in prossimità della giunzione, nelle regioni I, II e III.

L'efficacia del *damage engineering* realizzato tramite l'impiantazione ionica ha indotto l'IRCI intensificare la collaborazione con il DIET per approfondire le ricerche in tale campo e a considerare di introdurre l'impiantazione ionica di He nel processo produttivo dei diodi di potenza.

Lo studio finora illustrato costituisce un valido esempio di ricerca interdisciplinare, in cui hanno collaborato, con le loro specifiche competenze, ricercatori in fisica, in ingegneria elettronica e ricercatori dell'industria. Alcuni aspetti di fisica fondamentale della interazione particella-materia sono stati investigati utilizzando da una parte metodologie del campo della fisica degli acceleratori di particelle e dall'altra tecniche sperimentali sviluppate nell'ambito dell'ingegneria elettronica per lo studio delle caratteristiche dei dispositivi elettronici. I risultati di questi studi sono stati applicati con successo nel campo della ricerca tecnologica ed industriale.

2.5 Prospettive

I risultati mostrati finora sullo studio del danneggiamento indotto dall'impiantazione nei semiconduttori incoraggiano un ampliamento dello studio dei meccanismi di interazione ione-materia. La sensibilità ottenuta grazie al perfezionamento della tecnica di misura del *lifetime* permetterà di affrontare lo studio della dipendenza del danneggiamento dalla massa e dalla carica dello ione incidente.

In Figura 2.19, sono, ad esempio, mostrati i risultati delle simulazioni TRIM del numero di vacanze primarie prodotte dall'impiantazione alla stessa profondità e con la stessa dose di differenti ioni leggeri nel silicio. L'andamento del numero di vacanze prodotte al variare della massa e della carica dello ione incidente è una funzione diretta del potenziale di *screening* universale Φ_U utilizzata per i calcoli di

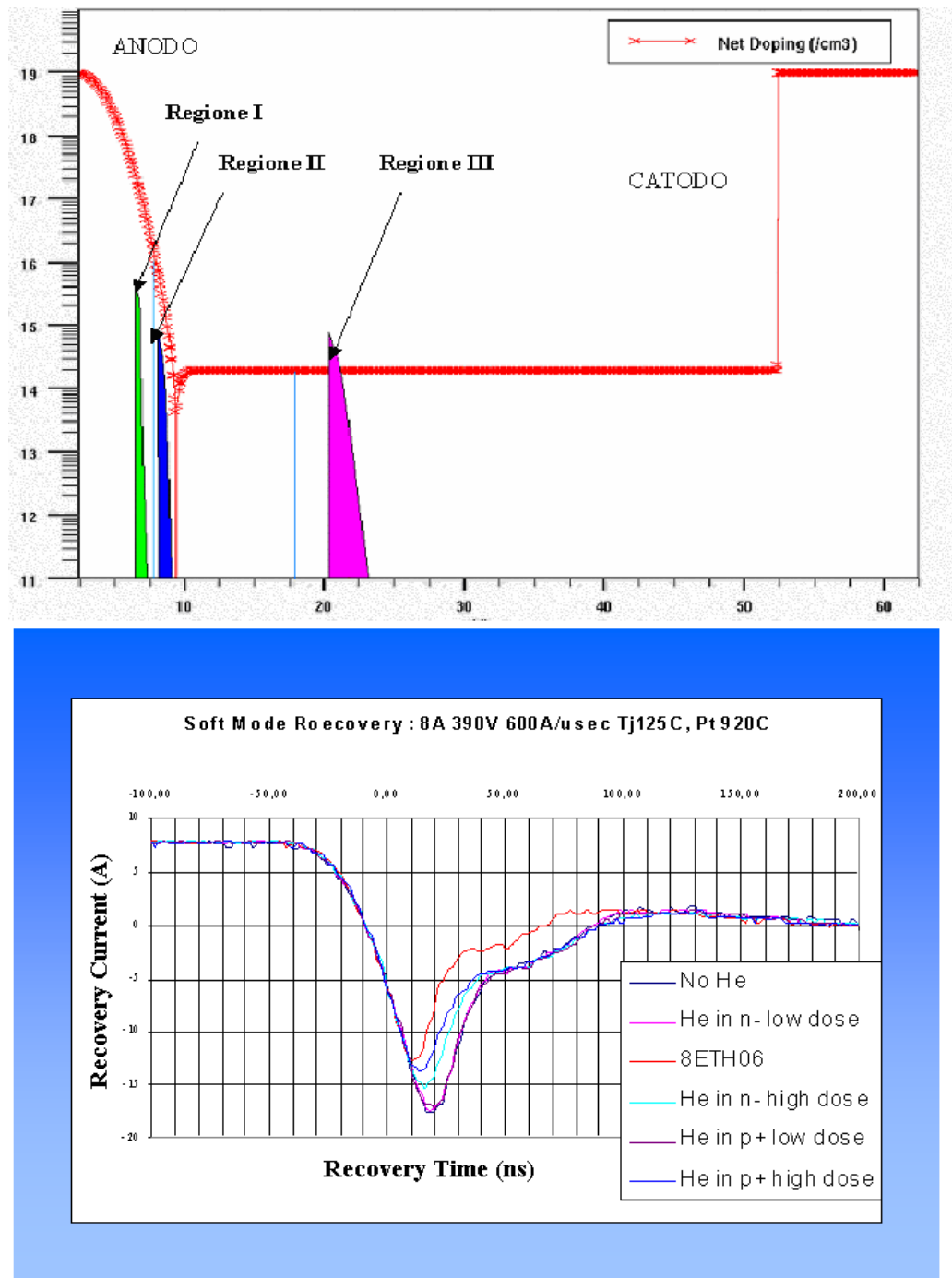


Figura 2.18: Misure svolte dall'IRCI dell'andamento temporale della corrente nella fase di switching (Reverse Recovery) di un diodo commerciale impiantato con He in varie posizioni e varie dosi. In alto, sono mostrate le profondità alle quali sono state realizzate le impiantazioni di He; in basso, è graficato l'andamento temporale della corrente dei diodi impiantati nella commutazione ON→OFF. Il picco di corrente inversa ed il tempo di commutazione sono migliorati tramite impiantazioni localizzate in prossimità della giunzione in cui si realizza l'accumulo di portatori minoritari in fase di conduzione.

scattering tra gli ioni. Sulla base quindi delle curve di *lifetime* misurate al variare della massa e della carica dello ione incidente, sarà possibile confrontare i differenti tipi di danneggiamento prodotto. Nel caso più generale, il tipo di danneggiamento può essere dovuto a:

1. Disordine nel reticolo cristallino. Esso si traduce, nella sua configurazione stabile, in una distribuzione di divacanze, o cluster di vacanze. La distribuzione di questo tipo di difetto, così come abbiamo fatto per le impiantazioni di elio, si può confrontare direttamente con calcoli TRIM della distribuzione del danneggiamento primario. Al variare della specie atomica sarà possibile stabilire un confronto più articolato tra i risultati delle misure di *lifetime* sul danneggiamento e la curva del potenziale universale di *screening*;
2. Specie impiantata. Gli ioni incorporati possono formare legami sia con il silicio, sia con le impurezze presenti (Ossigeno, Carbonio, drogante). In questo caso la distribuzione stabile del difetto introdotto dall'impiantazione può dare informazioni sul coefficiente di diffusione dei difetti primari in funzione dell'energia del fascio e sulle sezioni d'urto delle reazioni chimiche che legano gli ioni impiantati alla struttura del materiale.

In questa direzione, sono già state realizzate, presso la linea di impiantazione del Tandem TTT3 del Dipartimento di Scienze Fisiche, delle impiantazioni di H e Li con varie energie e dosi.

Un ulteriore interessante prospettiva, alla luce della tecnica che sarà descritta nel prossimo capitolo, consiste nello studio del danneggiamento indotto dall'impiantazione utilizzando fasci radioattivi. Negli ultimi anni, l'uso dei fasci radioattivi, sta trovando crescente interesse [16] per le notevoli potenzialità offerte per lo studio della struttura microscopica dei materiali. In particolare, nel caso del danneggiamento indotto nei semiconduttori, l'identificazione dei difetti legati allo ione instabile impiantato può essere facilmente ottenuta in base all'andamento temporale del segnale misurato, la cui intensità segue nel tempo il decadimento del radionuclide. Come vedremo più

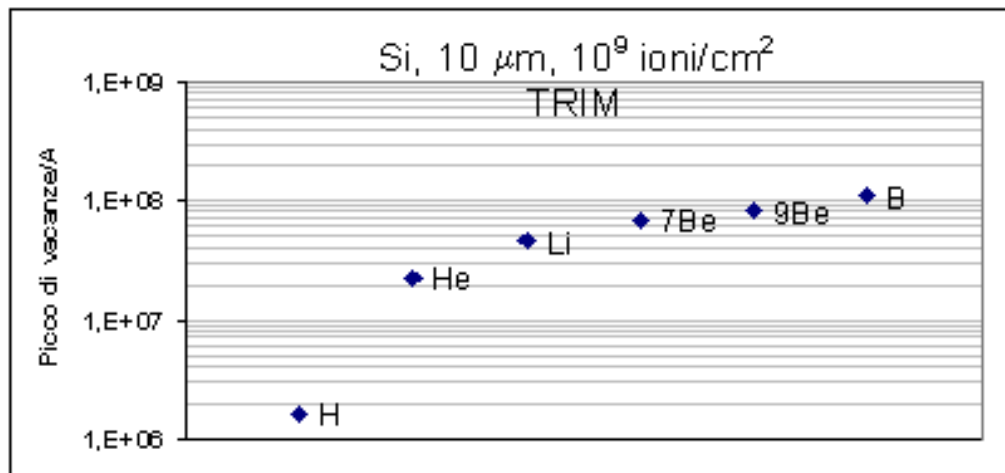


Figura 2.19: E' mostrato l'andamento del numero di vacanze nel picco di danneggiamento in funzione dello ione impiantato, per impiantazioni nel Si a profondità di 10 μm e dosi 10^9 ioni/ cm^2 .

in dettaglio nel prossimo capitolo, nel corso di questo lavoro è stato realizzato un fascio radioattivo di ^7Be , utilizzato in alcuni ambiti sia della ricerca di base (Capitolo IV), sia applicativi (misura dell'usura meccanica superficiale §3.3). Impiantando il ^7Be nei dispositivi di test, l'identificazione dei difetti legati al radionuclide potrà facilmente essere effettuata in base all'andamento temporale delle curve di *lifetime*. L'impiantazione di ioni radioattivi costituisce, quindi, un metodo efficace per la discriminazione tra i difetti dovuti al disordine del reticolo cristallino e quelli legati alla specie impiantata.

Capitolo 3

L'impiantazione di fasci radioattivi

Finora abbiamo utilizzato l'impiantazione ionica per danneggiare localmente ed in maniera controllata la struttura reticolare di un materiale. Ora, invece, illustreremo alcune applicazioni di tale tecnica come strumento in grado realizzare un'alterazione controllata della composizione del materiale. Infatti, l'impiantazione permette di incorporare localmente delle specie atomiche selezionate con un elevato grado di purezza. E', inoltre, possibile introdurre nella composizione del materiale un numero molto piccolo di impurezze, grazie all'impiantazione di dosi particolarmente basse, permettendo in questo modo di limitare il danneggiamento indotto dall'impiantazione. In particolare, l'impiantazione di basse dosi di un tracciante radioattivo come il ^7Be può essere utilizzata per tutte quelle applicazioni, nella ricerca di base o applicata, in cui si ha l'esigenza di introdurre delle sonde che siano a tutti gli effetti delle perturbazioni per le caratteristiche del materiale in studio.

Vedremo che l'impiantazione di ^7Be trova un'interessante applicazione nella misura dell'usura meccanica superficiale dei materiali (§3.3). Inoltre, in ambito della ricerca di base, essa è stata utilizzata per studiare l'influenza dell'effetto di *screening* degli elettroni liberi nei metalli (Capitolo IV). Tali applicazioni si avvalgono della produzione del fascio radioattivo di ^7Be (§3.2) e dell'apparato sperimentale per la modulazione dell'energia di impiantazione che realizzi distribuzioni controllate in profondità degli ioni.(§3.1.1).

3.1 La tecnica di impiantazione di ^7Be

Finora abbiamo utilizzato l'impiantazione ionica come metodo per alterare le caratteristiche di un materiale sulla base del danneggiamento della struttura reticolare indotto dagli urti elastici delle particelle incidenti. Abbiamo messo in luce l'interesse nell'indurre un danneggiamento localizzato, sia da un punto di vista generale per lo studio dei meccanismi di interazione tra gli ioni, sia in termini applicativi nel caso del *damage engineering* nei diodi di potenza.

Accanto a queste applicazioni, ne esistono altre in ambito tecnologico ed industriale che fanno uso di tale tecnica più semplicemente come strumento che permette di alterare in maniera localizzata la composizione del materiale. E' il caso, ad esempio, della introduzione di impurezze nel silicio per il drogaggio di regioni delle dimensioni dell'ordine dei μm al fine di realizzare dispositivi elettronici integrati su larga scala, oppure della alterazione della composizione superficiale dei materiali per aumentarne la resistenza all'usura (*hardening*). Queste applicazioni sono rese possibili dai meccanismi di interazione ione-materia, in base ai quali ioni con stessa energia si distribuiscono in un sottile strato di materiale intorno al *range* delle particelle (Figura 1.1). In questi casi, il danneggiamento che accompagna l'impiantazione costituisce un effetto indesiderato, che si cerca di "recuperare" con trattamenti termici (*annealing*). In questo lavoro, siamo interessati a sviluppare un metodo sperimentale che permetta di introdurre una selezionata specie atomica controllandone la distribuzione in profondità e limitando il più possibile il danneggiamento indotto dall'impiantazione. Le applicazioni, in questo caso, sono rivolte agli ambiti di interesse in cui si vogliano studiare le caratteristiche microscopiche di un materiale senza alterarne la struttura. Affinché l'effetto dell'impiantazione, in termini di alterazione delle caratteristiche del materiale, risulti a tutti gli effetti trascurabile, la carica e massa degli ioni incidenti devono essere piccole e le dosi impiantate ridotte al minimo. A tal proposito, va sottolineato che la tecnica di impiantazione è particolarmente indicata per tali scopi, perché permette di introdurre un numero estremamente limitato di "impurezze" nel materiale, dell'ordine di 1 ione su 10^{15} atomi del materiale.

Per concentrazioni così basse, la presenza stessa di tali ioni nel materiale non è facilmente misurabile, a meno che non si possa disporre di tecniche di rivelazione di tipo nucleare. Se lo ione impiantato, infatti, è un elemento radioattivo γ -emettitore, esso può essere individuato dalla rivelazione dai propri γ caratteristici.

Da questo punto di vista, il radioisotopo ^7Be presenta numerosi vantaggi:

- Il ^7Be decade per cattura elettronica in ^7Li stabile in un tempo di dimezzamento pari a 53 giorni. Nel 10 % dei decadimenti, esso popola il primo livello eccitato del ^7Li , il quale decade allo stato fondamentale, emettendo un γ di energia pari a 478 keV. Esso costituisce, quindi, una sorgente monocromatica che permette una efficienza di rivelazione libera dall'effetto somma¹. Inoltre, l'energia del γ è tale da garantire un basso coefficiente di assorbimento nel materiale in cui il ^7Be viene impiantato.
- Il tempo di dimezzamento è compatibile con misure prolungate nel tempo (fino a svariate settimane). Naturalmente, in questi casi, la misura va corretta per decadimento, il cui tempo caratteristico deve essere conosciuto con precisione ed essere indipendente dal tipo di materiale in cui il ^7Be viene impiantato. Nel §3.4 confermeremo tale affermazione in base alla misura della vita media di tale radionuclide impiantato in vari metalli ed, in seguito nel §4.1, illustreremo da quali premesse sperimentali sia nata l'esigenza di tale verifica.

La lunga vita media del ^7Be permette, inoltre, la realizzazione di un fascio radioattivo con le tecniche standard di produzione dei fasci di ioni. Infatti, una volta prodotto il ^7Be tramite la reazione $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$, il catodo arricchito in ^7Be da utilizzare nella sorgente di ioni per la realizzazione del fascio viene preparato *off-line*² tramite la procedura chimico-fisica illustrata in seguito [17].

¹Quando si hanno transizioni in cascata, l'efficienza di rivelazione deve tener conto dell'effetto somma, dovuto al fatto che alcuni γ possono essere emessi in coincidenza. Se questo avviene, infatti, nello spettro il γ emesso non sarà rivelato nel picco di energia E_γ , ma nel picco somma delle energie dei γ emessi in coincidenza (*summing out*). Analogamente, esiste una probabilità di *summing in*, se l'energia del γ può ottenersi come somma di più γ emessi contemporaneamente.

²Negli ultimi anni si stanno sviluppando tecniche innovative per la produzione di fasci di ioni non stabili (fasci "esotici"). Quando il tempo di vita medio del radioisotopo non è sufficientemente

- Dal punto di vista della radioprotezione, il ^7Be appartiene al quarto ed ultimo gruppo di radiotossicità. Per i radionuclidi appartenenti a tale gruppo, il limite al di sotto del quale non si applicano le norme di radioprotezione è fissato per sorgenti di attività pari a 5 MBq, che corrisponde ad un numero di atomi di ^7Be $\approx 10^{13}$. Se tali ioni vengono distribuiti uniformemente in un campione di 1 cm^2 di superficie, si ottiene una dose che, per le applicazioni cui siamo interessati, è già elevata. Almeno per quanto riguarda i campioni impiantati, quindi, le norme di radioprotezione non si applicano.
- Il danneggiamento prodotto dall'impiantazione di ^7Be è particolarmente contenuto per via dei bassi valori di massa e carica.

Con l'impiantazione di ^7Be , quindi, è possibile ridurre il danneggiamento abbassando le dosi impiantate fino al limite di rivelazione del γ emesso nel decadimento, determinato dal rapporto segnale-rumore dello spettro γ nella regione del picco di interesse. Utilizzando un rivelatore HPGe con una efficienza intrinseca del 28%³ e schermato con 5 cm di piombo, il fondo ambientale nella regione del picco a 478 keV è $\approx 0.2\text{ cps}$ ⁴. Supponendo che il tasso di conteggio del ^7Be sia pari almeno al doppio del fondo e che in geometria vicina l'efficienza geometrica sia $\approx 15\%$ si ottiene che la sorgente deve avere una attività minima di 95 Bq, che corrisponde ad una dose impiantata, su un campione di 1 cm^2 di superficie, pari a $6 \cdot 10^8$. Il danno indotto dall'impiantazione può essere ancora una volta stimato in base alla simulazione Monte Carlo TRIM. In Figura 3.1, sono mostrate le simulazioni del numero di vacanze per Å prodotte da una impiantazione di ^7Be di 6 MeV di energia e dose pari a 10^9 ioni/ cm^2 nel silicio e nell'oro⁵.

lungo, la selezione del radionuclide prodotto nella interazione di un fascio stabile con il bersaglio di produzione avviene *in flight*, ossia sotto fascio. Tale tecnica prevede, in questo caso, lo sviluppo di separatori di massa non convenzionali che abbiano una elevata accettazione in momento, al fine di raccogliere il maggior numero di radioisotopi prodotti.

³L'efficienza è usualmente riferita a quella di un rivelatore NaI da $3'' \times 3''$ all'energia di 661 keV. L'efficienza di rivelazione è circa la stessa per il picco di ^7Be a 478 keV.

⁴Counts per second.

⁵Nelle simulazioni TRIM, il numero di vacanze prodotte scala linearmente con la dose. Questo è dovuto al fatto che la simulazione si basa sulla approssimazione di dose nulla, per cui uno ione

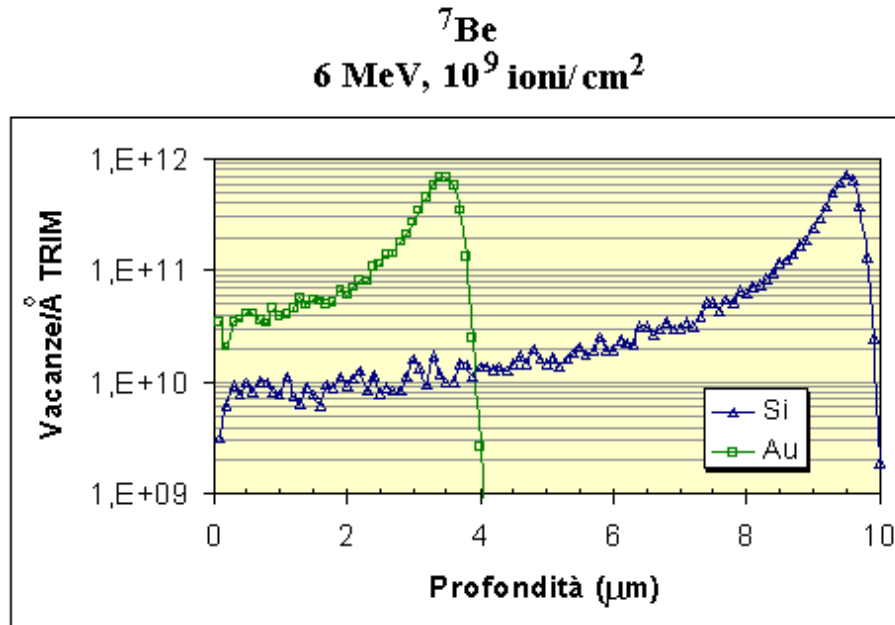


Figura 3.1: Simulazione TRIM del numero di vacanze prodotte per impiantazione di ${}^7\text{Be}$ di energia pari a 6 MeV e dose 10^9 ioni/cm 2 nel silicio e nell'oro. Il numero di vacanze è espresso per Å e può essere interpretato approssimativamente come numero di vacanze in uno strato monoatomico di materiale.

Visto che solo una frazione dell'ordine di 10^{-2} delle vacanze primarie prodotte sopravvive alla ricombinazione [18], il numero di difetti introdotti si può stimare, quindi, in $10^9/10^{10}$ vac/Å.

3.1.1 Il degradatore gassoso

Una volta minimizzato il danneggiamento utilizzando di un isotopo con bassi valori di massa e carica e tramite la riduzione della dose, resta da realizzare un apparato che permetta di impiantare gli ioni di ${}^7\text{Be}$ secondo una arbitraria distribuzione in profondità.

In Figura 3.7, è riportato il setup sperimentale messo a punto per il controllo incidente non “vede” il danneggiamento prodotto dai precedenti.

dell'energia del fascio, il quale si avvale sostanzialmente di un assorbitore gassoso con pressione controllabile. Il fascio di ^7Be , attraversando una sottile finestra di mylar ($1.5\ \mu\text{m}$), passa nella cella contenente gas (Ar), la cui pressione viene regolata attraverso una valvola comandata da un'unità di controllo. Nell'interazione con il gas, il fascio perde una quantità di energia ΔE proporzionale alla pressione nella cella. All'uscita dall'assorbitore gassoso, il fascio passa attraverso una seconda finestra di mylar, questa volta ricoperta da un sottile strato d'oro ^{197}Au . La sua funzione è di ottenere dalla diffusione elastica degli ioni di ^7Be sull' ^{197}Au , la cui sezione d'urto è nota con precisione, una misura accurata dell'energia e dell'intensità del fascio emergente dalla cella gassosa. Il numero di ioni di ^7Be diffusi a 45° rispetto alla direzione del fascio incidente, sono misurati tramite due rivelatori in silicio, disposti come in Figura 3.7. Una unità di controllo registra i dati e li confronta con quelli calcolati per ottenere la distribuzione di ^7Be desiderata. In base al confronto, viene regolata la pressione della cella gassosa. Tutta la procedura è stata realizzata tramite un programma di interfaccia su piattaforma Labview (NI). Una prova è stata effettuata impiantando una distribuzione lineare di ^7Be in una serie di fogli in Nichel. Dalla misura dell'attività dei vari fogli è stato ricostruito il profilo in profondità del ^7Be impiantato utilizzando l'apparato descritto. L'accordo tra il profilo impostato e quello misurato (Figura 3.2) dimostra che l'intera procedura ha una sufficiente affidabilità per realizzare le distribuzioni di ^7Be desiderate.

3.2 Realizzazione del fascio radioattivo di ^7Be

Un fascio radioattivo di ^7Be è stato realizzato presso il laboratorio dell'acceleratore Tandem TTT3 del Dipartimento di Scienze Fisiche dell'università Federico II di Napoli, per la prima volta, nell'ambito dell'esperimento NaBoNA (Napoli Bochum Nuclear Astrophysics) per misurare la sezione d'urto $^7\text{Be}(p,\gamma)^8\text{B}$ in cinematica inversa [23]. Come già detto, la produzione di un fascio radioattivo di ^7Be può essere ottenuta

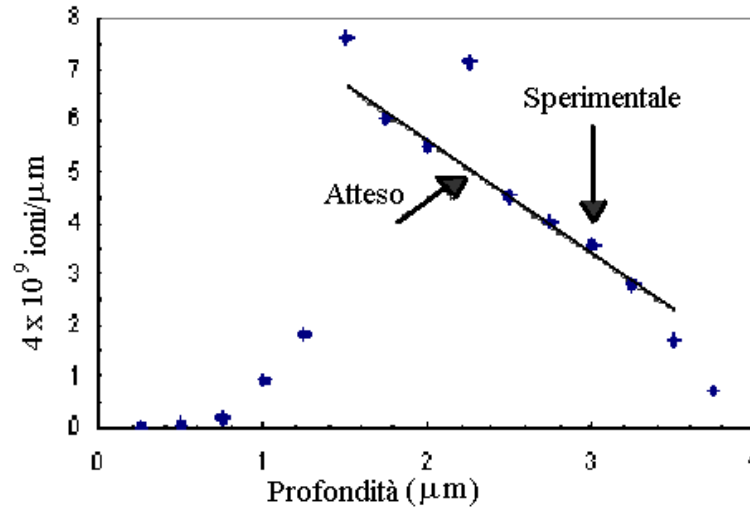


Figura 3.2: Verifica sperimentale dell'efficienza dell'apparato per la realizzazione di un profilo arbitrario di ^7Be in profondità, tramite un assorbitore gassoso per la modulazione dell'energia del fascio. I punti sperimentali sono ottenuti dalla misura dell'attività di uno stack di fogli di Nichel in cui il ^7Be è stato impiantato.

off-line. Il ^7Be è estratto attraverso una procedura di chimica qualitativa dalla matrice in Li metallico in cui prodotto via $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ ($E_p=11.4$ MeV, $I=20\mu\text{A}$). Il ^7Be viene in seguito introdotto nel catodo della sorgente a ioni negativi disponibile presso il Tandem, dal quale viene estratto per *sputtering* e poi accelerato. Descriviamo qui brevemente la procedura.

Radiochimica del ^7Be La procedura utilizzata per l'estrazione del ^7Be , dovuta a Kavanagh [20], è di chimica qualitativa. E' l'operazione più delicata dell'intero processo di produzione del fascio di ^7Be . Infatti, a causa dell'alta attività del ^7Be attivato nella matrice di Li (≈ 10 GBq), le operazioni devono avvenire in ambiente radioprotetto. La procedura è stata finora realizzata presso il Laboratorio Isotopico dell'Università della Ruhr di Bochum (Germania). Tuttavia, nel corso di tale lavoro, in previsione dei futuri sviluppi della tecnica, è stato allestito, presso il Laboratorio

dell'acceleratore Tandem del DSF dell'Università di Napoli Federico II, un laboratorio dedicato alla radiochimica del ^7Be , pensato sullo stesso modello di quello di Bochum, ma che si avvalga della automatizzazione dell'intera procedura, in modo da minimizzare la dose assorbita dall'operatore in fase di preparazione.

La procedura di preparazione dei catodi è descritta in [17].

Brevemente, la matrice di Li metallico viene disciolta in acqua bidistillata. Vengono poi aggiunte poche decine di mg di FeCl_3 in polvere. La soluzione viene acidificata con HCl 9N che scioglie il FeCl_3 . Viene aggiunta ammoniaca (NH_3OH , 25%) fino a far precipitare il ferro, che in parte si lega al Be. In questo modo avviene la separazione tra ^7Be e ^7Li . Dopo la centrifugazione, la fase liquida viene separata dal precipitato contenente il ^7Be , che viene lavato con acqua distillata e nuovamente disciolto in una piccola quantità di HCl . La procedura viene ripetuta per quattro volte. Questa soluzione passa attraversando una colonna a scambio ionico, costituita da una resina che trattiene il Fe lasciando passare il ^7Be . L'attività raccolta viene "gocciolata" in un piccolo foro nel catodo in Cu della sorgente a *sputtering*. Infine, il catodo viene chiuso pressando polvere di Ag. Tramite questa procedura si raccoglie fino al 95% dell'attività iniziale.

Accelerazione dei nuclei di ^7Be Descriviamo qui, in particolare, la procedura di accelerazione di un fascio di ^7Be realizzata presso l'acceleratore Tandem TTT3, nell'ambito di questo lavoro di tesi, per l'impiantazione di ^7Be in quattro differenti metalli [21], campioni utilizzati per le misure illustrate nel §3.4.

Dalla sorgente a *sputtering* (si veda la Figura 3.3) vengono iniettati ioni molecolari negativi di $^7\text{Be}^{16}\text{O}$ e $^7\text{Li}^{16}\text{O}$ con una energia pari a quella di estrazione (29 keV), i quali vengono accelerati una prima volta dal terminale ad una tensione pari a 2.1 MV. Nel terminale, gli ioni molecolari passano attraverso un foglio in carbonio (*stripper*) nel quale si frammentano e si caricano positivamente. Gli ioni emergenti $^7\text{Be}^{k+}$, $^{16}\text{O}^{l+}$ e $^7\text{Li}^{m+}$, con tutti gli stati di carica positivi possibili k, l e m, vengono in questo modo accelerati una seconda volta. Per raggiungere l'energia necessaria agli scopi della misura (§3.4), si utilizza il $^7\text{Be}^{2+}$, ottenendo: $E(^7\text{Be}^{2+}) = 7/23 \times 2.1 + 2 \times 2.1 = 4.8$

MeV. Il fascio passa, inoltre, attraverso un *post-stripper* prima del magnete di analisi per purificarlo dalla contaminazione ancora elevata di ${}^7\text{Li}$, grazie al fatto che nel magnete di analisi si seleziona il ${}^7\text{Be}^{4+}$. Il fascio prodotto ha intensità di ≈ 7 ppA e le attività impiantate nei bersagli vanno da 36 kBq a 3.6 kBq. Per ottenere un'impiantazione uniforme sulla superficie dei bersagli, è stata utilizzata una coppia di deflettori magnetici, disposti ortogonalmente tra loro.

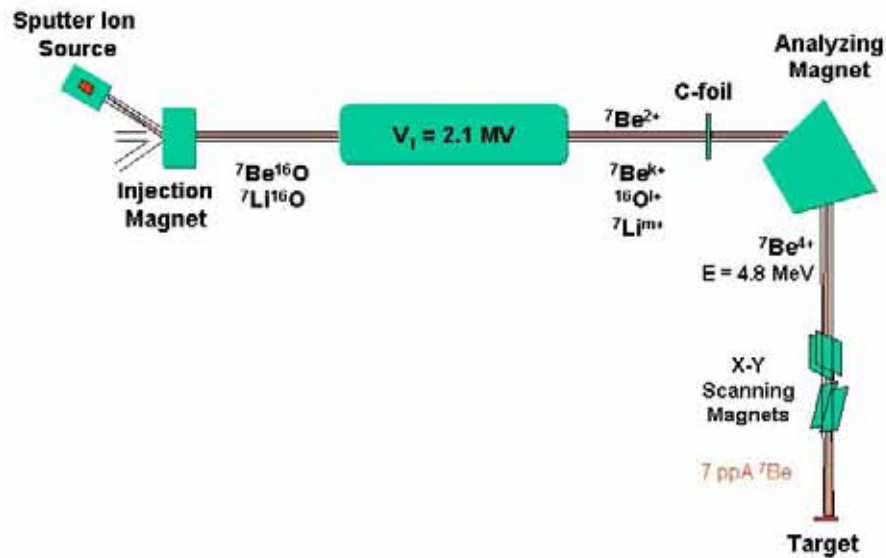


Figura 3.3: Schema dell'apparato sperimentale realizzato presso l'acceleratore Tandem TTT3 per l'impiantazione di un fascio di ${}^7\text{Be}$ da 4.8 MeV in vari bersagli metallici.

3.2.1 Produzione di un fascio di ${}^7\text{Be}$ presso l'acceleratore CIRCE

Nell'ambito di questo lavoro, e per gli sviluppi previsti per la tecnica di impiantazione di ${}^7\text{Be}$, sia di tipo applicativo (§ 3.3), sia in ricerche di fisica di base (Capitolo IV), è

stato affrontato uno studio di fattibilità per la produzione di un fascio di ^7Be presso l'acceleratore Tandem CIRCE del Centro di Competenza INNOVA. L'attività di tale apparato, installato recentemente a Caserta, è focalizzata in misure AMS (Accelerator Mass Spectroscopy) di datazione al ^{14}C nel settore dei beni culturali ed ambientali. Tale studio è finalizzato alla misura della resa della produzione di un fascio di ^7Be presso il CIRCE, ossia del rapporto tra il numero di ioni accelerati ed il numero di ioni presenti inizialmente nel catodo. La resa è una funzione di molti parametri dell'apparato, come l'efficienza di *sputtering* della sorgente, la trasmissione degli ioni molecolari, la massima tensione di terminale alla quale si può stabilmente lavorare, ecc. Va detto, a questo proposito, che l'aumento della resa nella produzione di un fascio radioattivo si traduce, a seconda delle esigenze, in un aumento della corrente di fascio e quindi in un ampliamento delle possibilità applicative della tecnica di impiantazione di ^7Be , oppure in una minore dose assorbita dagli operatori durante la fase della radiochimica del ^7Be .

A causa di una possibile contaminazione della sorgente del CIRCE dovuta al dimero $^7\text{Be}_2^-$ [24] che può a tutti gli effetti simulare uno ione di ^{14}C , i test sulla resa dell'apparato sono stati realizzati con catodi di bassa attività composti principalmente da ^9BeO e da ^7BeO utilizzato come tracciante. Tali catodi sono stati preparati presso il Laboratorio Isotopico dell'Università di Bochum. La quantità di ^9BeO utilizzato è stata determinata in modo tale che il Be presente nella preparazione fosse equivalente al ^7Be presente in un catodo di attività pari a 10 GBq. Tale attività corrisponde a 1.1×10^{-7} mol di ^7Be . La massa di $^9\text{Be}^{16}\text{O}$ che corrisponde a tale numero di moli è circa 2.7 μg . Tale quantità è stata estratta da un volume di soluzione satura di ^9BeO , in base al valore di solubilità pari a 0.2 mg/l (30 °C) [22]. La quantità di ^7Be contenuta nella soluzione è stata calcolata in base alla misura dell'attività della soluzione finale, ossia 170 kBq. Da questa soluzione, sono stati preparati 5 catodi di attività che vanno da 3.5 a 4.5 kBq. Dal rapporto $^9\text{Be}/^7\text{Be}$ della soluzione iniziale, la quantità di ^9Be presente in ciascun catodo può essere determinata scalando tale rapporto per l'attività di ciascun catodo.

Inizialmente, la determinazione della resa del Tandem CIRCE doveva essere basata sulla misura della corrente prodotta di ^9Be , ipotizzando una stessa efficienza di *sputtering* per il ^7Be e il ^9Be . In seguito, è stato verificato sperimentalmente che le correnti di ^9Be erano molto più elevate di quelle attese, sulla base della quantità di ^9BeO introdotta nei catodi secondo la procedura descritta. La determinazione della quantità di ^9Be utilizzata dipende dalla solubilità dell'ossido di berillio, il cui valore è, in base alle correnti misurate, più alto di quello utilizzato. Abbiamo, quindi, una volta iniettato dalla sorgente la massa 23, analizzato attraverso il telescopio a ionizzazione direttamente la corrente di ^7Be . In seguito ad un lavoro preliminare di ottimizzazione dei parametri della sorgente, della pressione dello *stripper* gassoso e dei parametri della macchina per il *tuning* del fascio, i catodi sono stati utilizzati per diverse ore. I risultati del test per i due catodi maggiormente usati sono riportati in Tabella (3.2.1), in cui sono riportati anche i valori delle correnti scalate per un catodo di attività pari a 11 GBq per ottenere un confronto con la resa del Tandem DSF [17]. Dai risultati ottenuti da questi primi test, possiamo stimare che la resa di produzione di un fascio di ^7Be presso in Tandem CIRCE risulta circa 30 volte superiore alla resa del Tandem DSF. Questo è principalmente dovuto alla guadagno in trasmissione dei fasci molecolari ($\approx 88\%$ contro $\approx 10\%$), alla maggiore efficienza di *sputtering* della sorgente e al fatto che potendo lavorare stabilmente a tensioni maggiori del DSF è stato possibile utilizzare un fascio di $^7\text{Be}^{2+}$ (invece di $^7\text{Be}^{3+}$ nel DSF), che ha maggiore probabilità di stato di carica. A parità di correnti prodotte, quindi, il Tandem CIRCE permette di avvalersi di attività di ^7Be circa 30 volte inferiori rispetto al DSF.

3.3 La misura dell'usura meccanica

Un'applicazione innovativa dell'impiantazione di ^7Be come tracciante radioattivo è costituita dalla misura con sensibilità submicrometrica dell'usura superficiale di parti meccaniche in movimento. Infatti, nota la distribuzione di ^7Be in profondità, la

	CIRCE		DSF
	Catodo 1	Catodo 2	
Attività	3.1 kBq	4.9 kBq	11 GBq
Durata (h)	46.9	34.0	55.0
Corrente media (ppA)	$3.95 \cdot 10^{-5}$	$7.13 \cdot 10^{-5}$	4
Efficienza	$2.01 \cdot 10^{-3}$	$1.7 \cdot 10^{-3}$	
Efficienza della sorgente	$7.4 \cdot 10^{-3}$	$6.3 \cdot 10^{-3}$	$3.0 \cdot 10^{-3}$
Corrente media scalata alla attività di 11 GBq (ppA)	140.2	160.2	4

Tabella 3.1: Risultati dei test effettuati presso l'acceleratore CIRCE per il calcolo della resa nella produzione di un fascio di ^7Be . I valori misurati sono confrontati con quelli ottenuti presso l'acceleratore DSF per un fascio di ^7Be della stessa energia.

quantità di materiale rimosso a causa dell'usura di parti meccaniche in movimento tra loro può essere stimata *on line*, misurando la variazione dell'attività residua o, in modo complementare, rimossa (Figura 3.4).

In generale, si può essere interessati a conoscere l'andamento temporale del coefficiente di usura di parti meccaniche in movimento oppure semplicemente l'intervallo di tempo in cui in un dato accoppiamento tribologico si raggiunge il limite di tolleranza. Nel primo caso, il coefficiente di usura può essere ottenuto impiantando ^7Be con una distribuzione di costante in profondità. L'attività rimossa sarà, in tal caso, direttamente proporzionale alla quantità di materiale asportato⁶. Nel secondo caso, basterà impiantare il ^7Be alla profondità stabilita dai limiti di tolleranza. Il raggiungimento del limite sarà facilmente identificabile in base alla brusca diminuzione dell'attività misurata sul campione.

⁶Va osservato, tuttavia, che per ottenere una misura che abbia la stessa precisione per l'intera misura, il profilo di impiantazione deve dipendere dal tipo di attività misurata (rimossa o residua). Infatti, ad esempio, se si misura l'attività rimossa, un profilo costante comporterebbe una misura con una buona precisione iniziale perché l'usura si stima come di differenza di attività rimosse piccole, ma cattiva alla fine, perché ottenuta come differenza di grandi numeri.

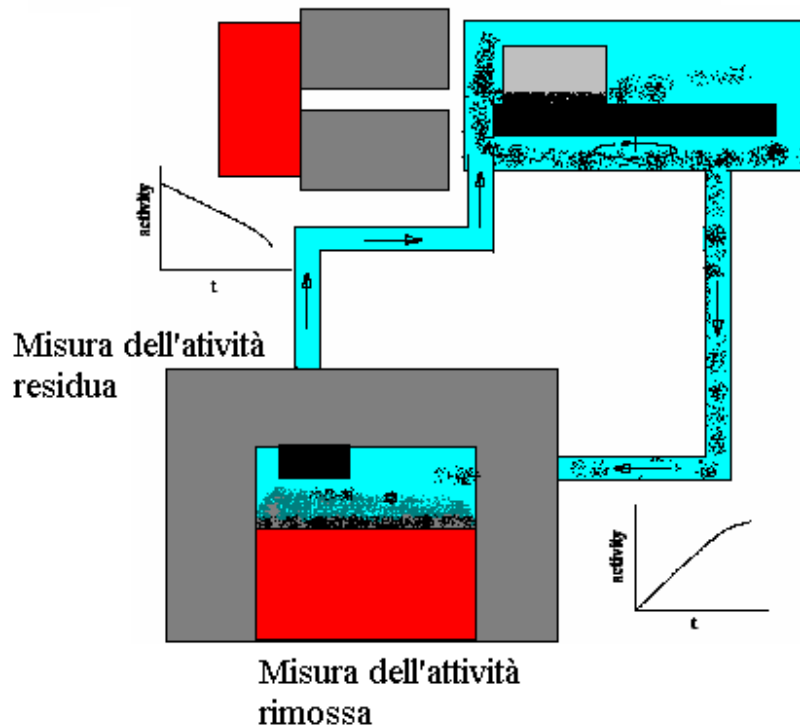


Figura 3.4: Schema dell'apparato sperimentale per la misura dell'usura meccanica utilizzando l'impiantazione ^7Be come tracciante radioattivo.

Risulta chiaro, quindi, in questo caso, ma in generale per tutte le tecniche che utilizzano traccianti radioattivi per la misura dell'usura, che la precisione con la quale si realizza la distribuzione del tracciante radioattivo è di cruciale importanza, visto che la determinazione della quantità di materiale rimosso dipende direttamente da tale distribuzione.

Le altre tecniche che utilizzano radionuclidi si basano essenzialmente sulla attivazione del materiale tramite irraggiamento di neutroni o protoni. La distribuzione dei radionuclidi attivati dipende dalla sezione d'urto di attivazione e dalla composizione del materiale, limiti questi al controllo dei profili in profondità di radioisotopi attivati. Nel caso dell'impiantazione di ^7Be , la distribuzione del tracciante radioattivo è, invece, affidato ai calcoli di perdita di energia del ^7Be nel materiale e al controllo

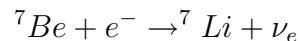
dell'energia incidente, della cui precisione si è già discusso in precedenza. I vantaggi dell'utilizzo dell'impiantazione ionica di ^7Be come tracciante radioattivo per la misura dell'usura, rispetto alle tecniche di attivazione, non si limitano, tuttavia, al controllo della distribuzione del radionuclide. Infatti:

- Si preservano le caratteristiche del materiale di cui si vuole conoscere la resistenza all'usura, perché il danneggiamento di basse dosi di ^7Be è estremamente ridotto. L'impiantazione può incidere significativamente su tali proprietà solo se le dosi impiantate alterano stechiometricamente la composizione del materiale e/o se il danno indotto è tale da distruggere la struttura reticolare preesistente, introducendo un elevato grado di amorfizzazione del materiale. Un danneggiamento di questo genere è prodotto con dosi molto superiori a quelle utilizzate con l'impiantazione di ^7Be , ma necessarie, invece, nelle tecniche che utilizzano l'attivazione. Infatti, per ottenere attività misurabili è necessario irraggiare il campione con particelle di energie e dosi molto elevate a causa delle basse sezioni d'urto di attivazione.
- Nella tecnica di attivazione, gli isotopi attivati sono in genere più d'uno e lo spettro γ può, quindi, risultare di difficile interpretazione.
- La misura dell'usura utilizzando il ^7Be può essere realizzata in un qualsiasi tipo di materiale. Le tecniche di attivazione, al contrario, a causa delle elevate energie e dosi richieste, possono essere applicate solo a materiali che offrono una grande resistenza al danneggiamento indotto dall'impiantazione (metalli, ceramiche). Tale tecnica si applica quindi anche a materiali di grande interesse come quelli plastici e polimerici, utilizzati per la produzione di protesi.

3.4 Una misura preliminare: la vita media del ${}^7\text{Be}$ nei metalli

Durante la misura dell'usura con la tecnica di impiantazione di ${}^7\text{Be}$, la variazione osservata dell'attività è in parte dovuta alla rimozione di materiale ed in parte al decadimento naturale del radionuclide. La precisione della tecnica dipende quindi, in particolare per le misure prolungate nel tempo, anche dalla correzione che dipende dal valore della vita media del ${}^7\text{Be}$.

Il processo nucleare che origina il decadimento del ${}^7\text{Be}$ è la cattura elettronica, in base al quale un elettrone orbitale del ${}^7\text{Be}$ viene catturato dal nucleo:



dove con e^- si indica l'elettrone catturato e con ν_e il neutrino emesso. La probabilità di cattura è proporzionale alla densità elettronica nel nucleo [26]. Per questo motivo la gran parte delle catture avvengono nella shell K.

Sulla base di evidenze sperimentali che descriveremo più in dettaglio nel prossimo capitolo, è stato ipotizzato che la densità elettronica sui nuclei potrebbe essere alterata in ambiente metallico a causa della presenza degli elettroni delocalizzati. Anticipiamo qui, brevemente, che questa ipotesi nasce dall'interpretazione delle misure della sezione d'urto a bassa energia della fusione $d(d,p)t$ indotta in bersagli metallici. Tale reazione esibisce un anomalo incremento della sezione d'urto a basse energie nel caso in cui il materiale nel quale si induce la reazione ha natura metallica. L'entità dell'effetto di *electron screening* è stato finora spiegato [28] trattando gli elettroni liberi nei metalli secondo il modello di Debye-Drude, in base al quale la dimensione del raggio di schermatura prodotto da tali elettroni è sufficientemente piccolo da spiegare l'intensità dell'effetto di schermo osservato. Questo modello è consistente sia con la gran quantità di dati sperimentali raccolti sull'*electron screening* [27], sia con l'andamento in temperatura dell'intensità dello *screening* [29].

Se la densità elettronica sui nuclei viene alterata dagli elettroni liberi nei metalli, allora la vita media del ${}^7\text{Be}$, che decade unicamente per cattura elettronica, potrebbe

dipendere dal materiale in cui viene impiantato. In tal caso, bisognerebbe tenere conto che la correzione da apportare nelle misure di usura per il decadimento del ^7Be dipende dal particolare materiale analizzato.

Per misurare l'incidenza di tale effetto sul decadimento del ^7Be , esso è stato impiantato in quattro differenti metalli: Palladio (Pd), Tungsteno (W), Tantalio (Ta) e Zirconio (Zr). Per i primi tre metalli è stato osservato un *electron screening* elevato [27], mentre per Zr l'effetto è trascurabile. Seguendo per varie settimane il decadimento dei campioni impiantati con rivelatori HPGe, sono stati stimati i tempi di dimezzamento del ^7Be nei vari metalli. Per evidenziare la presenza di eventuali errori sistematici, le misure sono state condotte indipendentemente in due laboratori, a Napoli e a Debrecen (Ungheria).

La tecnica di impiantazione ionica è, anche in questo caso, particolarmente vantaggiosa. Infatti:

- Disponendo di un fascio puro di ^7Be , le dosi di impiantazione necessarie per effettuare la misura della vita media con una sufficiente precisione sono particolarmente basse ($\approx 10^8$ ioni/cm²). Il danneggiamento indotto dall'impiantazione è praticamente trascurabile e, quindi, possiamo ritenere che la struttura metallica del materiale in cui il ^7Be è stato introdotto resti inalterata. In questo senso, tale misura si differenzia rispetto alle precedenti (Tabella 3.2) perché, ad eccezione di [36], il ^7Be viene prodotto nel campione per attivazione attraverso l'irraggiamento con alte dosi di un fascio primario stabile di elevata energia oppure si utilizzano fasci di ^7Be non puri.
- L'impiantazione permette di introdurre il ^7Be alla profondità desiderata. Questa proprietà, in tale misura, è particolarmente importante perché i primi strati superficiali del metallo, in genere, sono ossidati e non presentano, quindi, le caratteristiche metalliche alle quali siamo interessati. Le impiantazioni, come illustrato nel §3.2, sono state, quindi, realizzate ad una energia di laboratorio pari a 4.85 MeV, che corrisponde ad un *range* di impiantazione per i vari metalli di $\approx 3\text{-}4\ \mu\text{m}$ (Tabella 3.2).

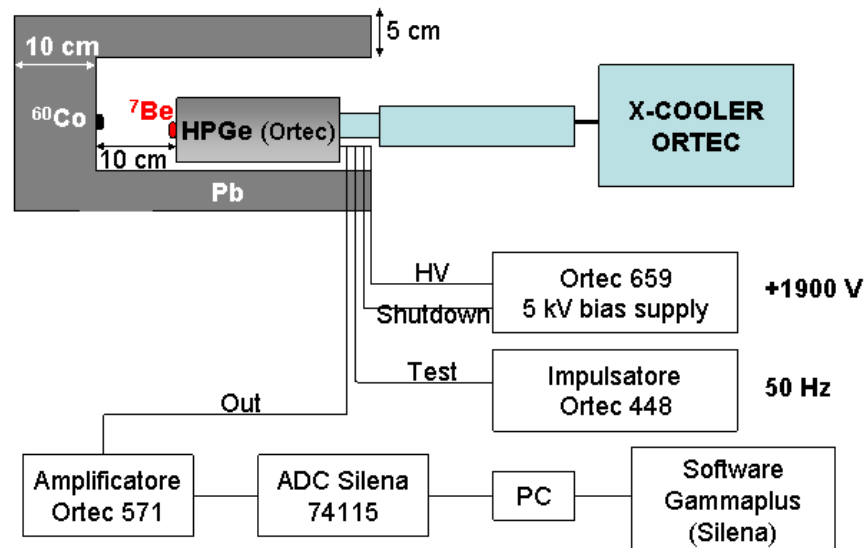


Figura 3.5: Schema del setup sperimentale di Napoli utilizzato per la misura della vita media del ^7Be impiantato in vari metalli.

Il setup sperimentale realizzato a Napoli, mostrato in Figura 3.5, è costituito da un rivelatore HPGe con efficienza del 28% raffreddato alla temperatura di funzionamento (77 K) dal compressore X-Cooler (Ortec) e schermato con 5 cm di piombo, dalla catena elettronica per il processamento dei segnali del rivelatore, dal multicanale per la conversione dei dati e da un pc che si avvale del programma per la gestione degli spettri γ “Gammaplus” (Silena). Per ottenere una buona precisione della misura, si è cercato di ridurre le possibili cause dei errori sistematici:

1. Nella catena elettronica è presente un impulsatore per la misura accurata del tempo morto del sistema.
2. Insieme al campione impiantato posto in geometria vicina rispetto al rivelatore,

è stata utilizzata anche una sorgente di ^{60}Co , posta a 10 cm dal rivelatore in modo da ridurre il pile up ed il tempo morto. Tale sorgente ha fatto da riferimento per eventuali variazioni dell'efficienza di rivelazione (non geometrica) nel corso di misure. Per il calcolo del tempo di dimezzamento, infatti, i dati del picco di ^7Be a 478 keV sono stati riferiti per ogni spettro acquisito ai due picchi a 1173 keV e a 1332 keV del ^{60}Co .

3. La misura del tempo assoluto è stata monitorata con frequenza settimanale con l'ora esatta di Greenwich [25]. Una deriva del clock del pc, infatti, avrebbe un effetto sistematico sulla stima del tempo di vita medio.

L'acquisizione e la memorizzazione degli spettri integrati in 1 o 6 ore, a seconda dell'attività del campione, avviene automaticamente, una volta programmata una sequenza nel software Gammaplus. La Figura 3.4 mostra un tipico spettro γ , in cui si identificano il picco del ^7Be , i due del ^{60}Co e il picco di annichilazione a 511 keV. E', inoltre, mostrato l'andamento temporale del tasso di conteggio del ^7Be .

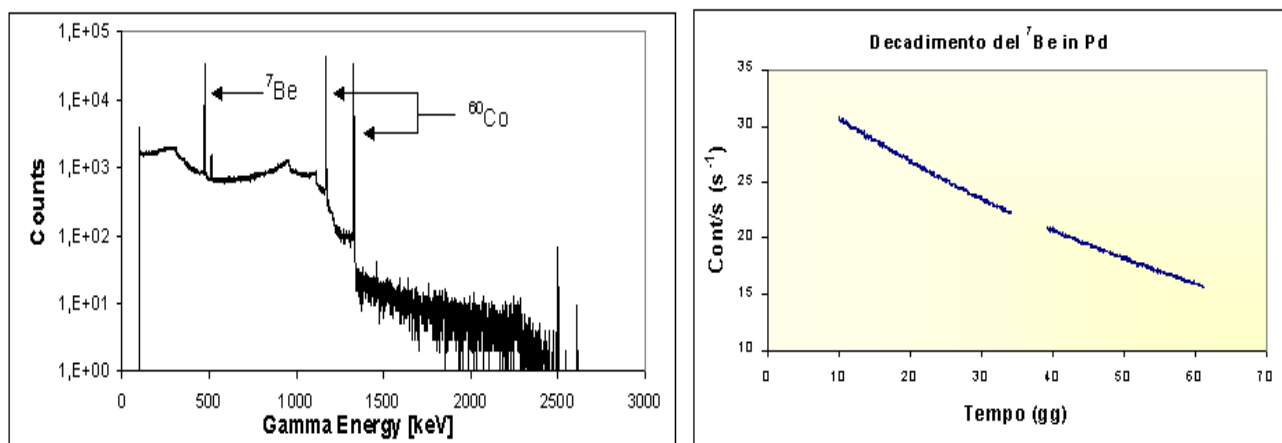


Figura 3.6: Uno spettro γ integrato in 1 ora della misura della vita media del ^7Be impiantato nel Pd. Sono facilmente riconoscibili le righe del ^7Be a 478 keV, del Co^{60} a 1173 e 1332 keV ed il picco di annichilazione a 511 keV. Inoltre, è mostrato il decadimento del tasso di conteggio.

Tabella 3.2: Procedura di impiantazione e risultati delle più recenti misure della vita media del ${}^7\text{Be}$.

Autore	Fascio primario	Materiale ospite, Range del ${}^7\text{Be}$	Tempo di dimezza- mento del ${}^7\text{Be}$ [gg] o rapporto (%)
F. Lagoutine [36]	${}^7\text{Be}$ (Energia non riportata)	Al metallico, -	53.17 ± 0.07
E.B. Norman [37]	40 MeV ${}^3\text{He}$	grafite, -	53.107 ± 0.022
	10 MeV H	Nitrato di boro, -	53.174 ± 0.037
	45 MeV ${}^7\text{Li}$	Ta, -	53.195 ± 0.052
		Au, -	53.311 ± 0.042
T. Ohtsuki [32]	16 MeV H	gabbie di C_{60} , -	52.68 ± 0.05
	irraggiamento γ	${}^9\text{Be}$ metallico, -	53.12 ± 0.05
A. Ray [33]	7 MeV H	Au, $1.8 \mu\text{m}$	$\frac{T_{1/2}(\text{Au}) - T_{1/2}(\text{Al}_2\text{O}_3)}{T_{1/2}(\text{Al}_2\text{O}_3)} =$ $(0.72 \pm 0.07)\%$
S.H. Zhou [34]	Fascio misto ${}^7\text{Li}/{}^7\text{Be}$	Al_2O_3 , $2 \mu\text{m}$	$\frac{(T_{1/2}(\text{Au}) - T_{1/2}(\text{Pd}))}{T_{1/2}(\text{Pd})} =$ $(0.8 \pm 0.2)\%$
		Pd, $23.6 \mu\text{m}$	
Z.Y. Liu [35]	3.2 MeV H	Au, $20.9 \mu\text{m}$	$\frac{(T_{1/2}(\text{Au}) - T_{1/2}(\text{Be}))}{T_{1/2}(\text{Be})} \leq$ 0.12%
		Berillio naturale, $2 \mu\text{m}$	
Questo lavoro [21], [38]	${}^7\text{Be}$	Oro naturale, $1 \mu\text{m}$	Tabella (3.3)
		Pd, $2.9 \mu\text{m}$	
		W, $2.7 \mu\text{m}$	
		Zr, $4.3 \mu\text{m}$	
		Ta, $3.1 \mu\text{m}$	

I dati sperimentali raccolti dai due laboratori sono mostrati in Tabella (3.3). Sono riportati sia i valori dei tempi di dimezzamento ricavati dai dati di ^7Be non normalizzati, sia quelli con le normalizzazioni ai due picchi del ^{60}Co e al picco di radiattività ambientale a 1460 keV (quando sufficientemente intenso). Un confronto diretto tra i risultati dei due laboratori è possibile solo per il Pd e W. Le misure relative al Pd sono in ottimo accordo tra loro. Per quanto riguarda W la precisione della misura di Napoli non è sufficiente, a causa del fatto che non era disponibile alcuna sorgente di riferimento esterna (escluso il debole segnale del fondo ambientale). Questi risultati vanno inoltre confrontati con il valore adottato in letteratura [31], ossia 53.22 ± 0.06 gg.

In definitiva, entro lo 0.3-0.4%, possiamo escludere una variazione della vita media del ^7Be a causa del differente ambiente metallico. La correzione per decadimento, quindi, nel caso particolare della misura dell'usura, ma in generale in tutte le applicazioni che possono fare uso dell'impiantazione di ^7Be , non dipende dal particolare materiale impiantato.

I dati ottenuti sulla vita media del ^7Be meritano, tuttavia, un approfondimento, alla luce della apparente discrepanza tra il modello in base al quale la densità elettronica presente sui nuclei di ^7Be dovrebbe cambiare in dipendenza del numero di elettroni liberi nel metallo e l'evidenza sperimentale che dimostra questo effetto, se esiste, è contenuto entro lo 0.3-0.4%. Il prossimo capitolo sarà dedicato a questo argomento.

Tabella 3.3: Dati sperimentali della vita media del ^7Be impiantato in Pd, W, Zr e Ta, misurata nei due laboratori di Napoli e Debrecen (Ungheria) [21].

Workgroup		$T_{1/2}(^7\text{Be})$ [gg]			
Metodo di normalizzazione		Pd	W	Zr	Ta
Senza norm.	Napoli	53.14±0.05	53.65±0.06		
	Debrecen	53.28±0.14	52.95±0.15	53.01±0.05	53.21±0.34
	Media	53.16±0.05	53.55±0.06		
Norm. alla riga 1173 keV	Napoli	53.13±0.14	-		
	Debrecen	53.18±0.22	53.32±0.21	53.04±0.15	52.67±0.36
	Media	53.14±0.12			
Norm. alla riga 1332 keV	Napoli	53.31±0.14	-		
	Debrecen	53.30±0.23	53.07±0.21	53.02±0.15	52.70±0.36
	Media	53.31±0.12			
Norm. alla riga 1460 keV	Napoli	-	54.72±0.94		
	Debrecen	53.41±0.48	53.39±0.43	53.12±0.20	53.46±0.51
	Media		53.62±0.39		

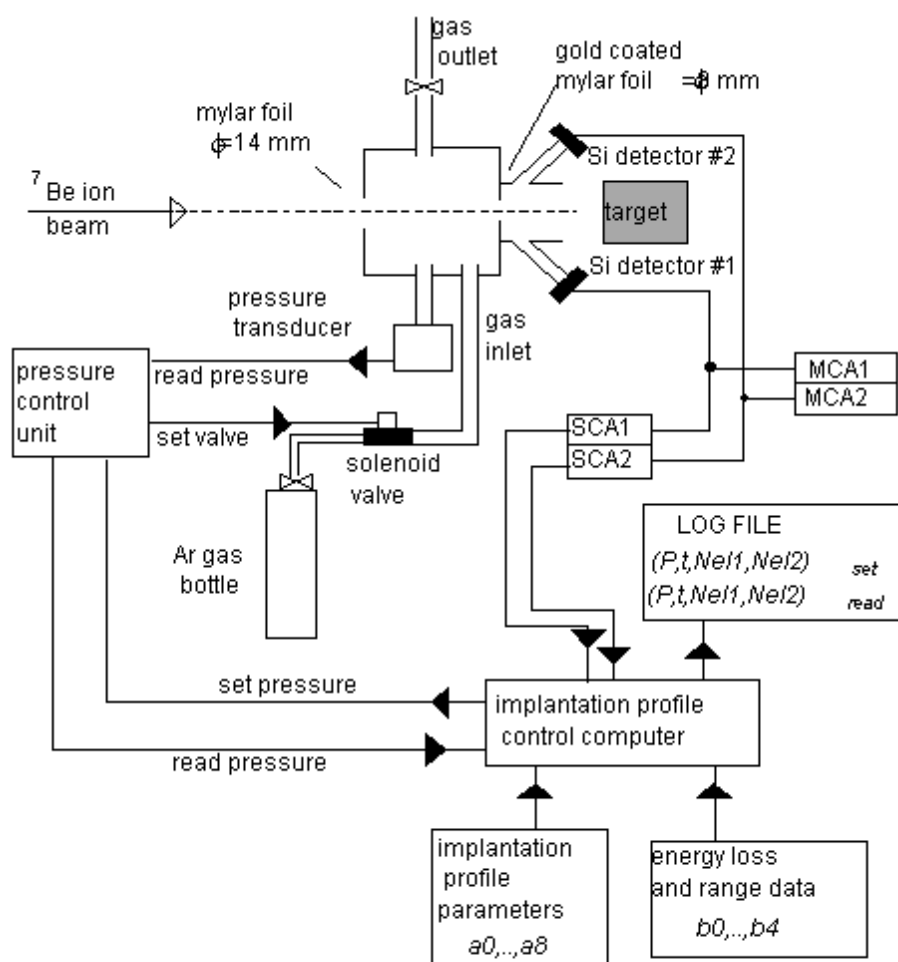


Figura 3.7: Schema dell'apparato per la modulazione dell'energia di un fascio di ^7Be per la realizzazione una distribuzione in profondità controllata.

Capitolo 4

Cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ in ambiente metallico ed *electron screening*

L'interesse della misura della vita media del ${}^7\text{Be}$ nei metalli presentata nel §3.4 è di carattere più generale di quanto finora detto. Tale misura si inserisce in un più ampio quadro sperimentale, volto alla comprensione dell'influenza degli elettroni liberi nei metalli nelle reazioni e nei decadimenti nucleari. La misura della vita media del ${}^7\text{Be}$ nei metalli costituisce una verifica dell'interpretazione degli studi sperimentali sull'*electron screening* nelle reazioni nucleari indotte a bassa energia in ambiente metallico.

Recenti studi sperimentali nell'ambito della astrofisica nucleare discussi nel §4.1 hanno mostrato che la reazione $d(d,t)p$ indotta ad energie molto al di sotto della barriera coulombiana e realizzata in ambiente metallico è favorita rispetto alla stessa reazione indotta nel deuterio puro. Tali misure sono state interpretate [28] come il risultato della schermatura delle cariche nucleari degli ioni reagenti da parte degli elettroni liberi nei metalli (*electron screening*). Il modello proposto per stimare l'effetto di schermo è lo stesso che si utilizza in ambiente astrofisico (Modello di Debye), in cui lo *screening* nelle reazioni termonucleari è realizzato dal mare di elettroni liberi nel

plasma stellare. Applicando tale modello agli elettroni liberi nei metalli, il raggio della nuvola elettronica che scherma la carica nella reazione $d(d,p)t$ risulta molto inferiore al raggio del deuterio.

Se questo comportamento degli elettroni può applicarsi anche, ad esempio, agli ioni di ${}^7\text{Be}$ immersi in ambiente metallico, allora l'aumento della densità elettronica sui nuclei dovuta allo *screening* degli elettroni liberi potrebbe essere misurato da una variazione del tempo di decadimento del ${}^7\text{Be}$. I risultati sperimentali, abbiamo visto, mostrano che il limite superiore dell'influenza della vita media dal particolare ambiente metallico è dello 0.4%, inducendo ad ipotizzare che la cattura degli elettroni liberi nel metallo, per questo particolare sistema, non si verifica.

Per cercare di comprendere questo comportamento, più in dettaglio, analizzeremo la cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ in ambiente metallico, utilizzando sia il modello di *screening* di Debye-Drude (§4.3), in cui gli elettroni sono trattati come un gas di particelle che seguono la statistica di Maxwell-Boltzmann, sia il modello di *screening* di Thomas-Fermi (§4.4), in base al quale gli elettroni sono visti come un gas di fermioni altamente degenere.

4.1 Electron screening nei metalli nella reazione $d(d,p)t$

Lo studio che vogliamo affrontare trae origine dalle misure di *electron screening* osservato nella reazione $d(d,p)t$ alle energie di interesse astrofisico, ossia dell'ordine dei keV. A tali energie, la sezione d'urto delle reazioni indotte da due particelle di cariche Z_1e e Z_2e si scrive [39]:

$$\sigma(E) = \frac{S(E)e^{-2\pi\eta(E)}}{E} \quad (4.1)$$

dove $\eta(E) = \frac{Z_1Z_2e^2}{\hbar v}$ è il parametro di Sommerfeld, v è la velocità relativa nel sistema del centro di massa ed $S(E)$ il fattore astrofisico. In questa espressione, si assume che

il potenziale di interazione sia quello puramente coulombiano dovuto ai nuclei non schermati.

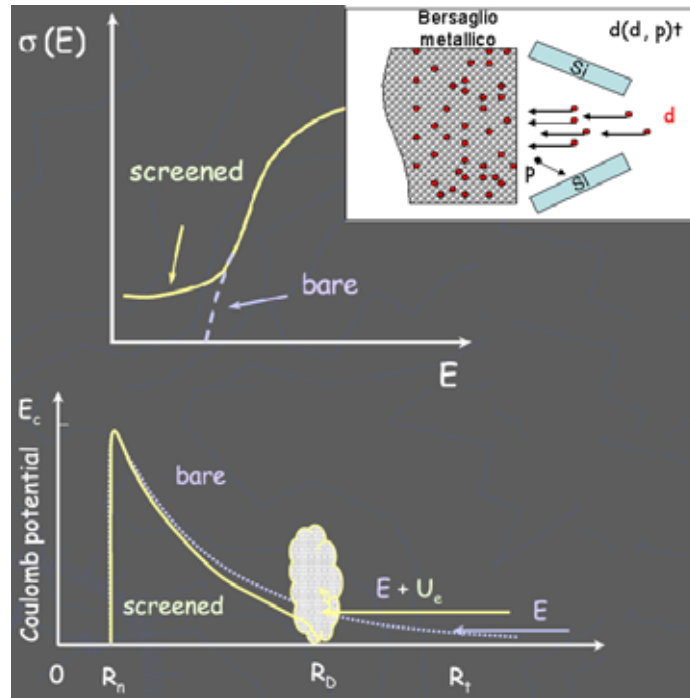


Figura 4.1: Potenziale di interazione nelle reazioni indotte ad energie minori dell'altezza della barriera coulombiana. Si vede schematicamente l'influenza della nuvola elettronica sul potenziale ed il significato del potenziale di *screening* U_e . In alto, è inoltre mostrato lo schema del set up sperimentale utilizzato per la misura di U_e della reazione $d+d$.

Quando l'energia disponibile nel sistema del centro di massa è molto al di sotto della barriera coulombiana (Figura 4.1), ossia quando la reazione procede per effetto tunnel, la sezione d'urto di reazione, o meglio suo fattore astrofisico, è molto sensibile alla schermatura degli elettroni.

In ambiente stellare, la materia è quasi completamente ionizzata e gli ioni si trovano immersi in un mare di elettroni quasi liberi; in laboratorio, la schermatura è dovuta agli elettroni orbitali di entrambi gli ioni che inducono la reazione. Per poter stimare la sezione d'urto delle reazioni che avvengono in ambiente stellare, bisogna prima

determinare il fattore di incremento f_{lab} della sezione d'urto schermata dagli elettroni atomici σ_s rispetto a quella non schermata σ_b :

$$f_{lab} = \frac{\sigma_s}{\sigma_b} = \frac{\sigma_b(E + U_e)}{\sigma_b(E)} \quad (4.2)$$

A tutti gli effetti, come si vede dallo schema in Figura 4.1, a causa dell'abbassamento della barriera coulombiana è “come se” lo ione incidente avesse una energia maggiorata di una quantità U_e , rispetto al caso non schermato. U_e viene chiamato potenziale di *screening*.

Nel caso della reazione $d(d,p)t$, il potenziale di *screening* dovuto agli elettroni atomici del deuterio, misurato utilizzando un bersaglio gassoso, è pari a 25 ± 5 eV [40]. Tale reazione è stata studiata intensivamente una volta scoperto che, quando indotta in ambiente metallico, essa esibisce un potenziale U_e più elevato di un ordine di grandezza. La reazione $d(d,p)t$ è stata misurata a temperatura ambiente in quasi tutti gli elementi della tavola periodica [27], mettendo in evidenza una sistematica in base alla quale l'aumento del fattore astrofisico dipende dalla natura metallica del bersaglio nel quale si induce la reazione. I materiali isolanti, infatti, non presentano alcun effetto di *screening* anomalo. In Figura 4.2, è mostrato l'aumento del fattore astrofisico osservato nel Tantalio. In generale, il potenziale di *screening* medio osservato nei metalli è dell'ordine di ≈ 300 eV.

Il setup sperimentale è sommariamente raffigurato in Figura 4.1. Una volta rimossi un centinaio di strati monoatomici dalla superficie del metallo¹ tramite *sputtering* con Kr, si procede alla impiantazione di deuterio nel bersaglio. La reazione misurata $d(d,p)t$ avviene tra uno ione di deuterio nel bersaglio ed uno incidente. Il protone emesso viene rivelato tramite quattro rivelatori in Si affacciati sul bersaglio per coprire il massimo angolo solido. La presa dati inizia solo quando la resa della reazione si stabilizza. Infatti, man mano che procede l'impiantazione alle varie energie di interesse per la reazione, la concentrazione del deuterio cresce fino al limite di solubilità che dipende dalla temperatura e dal particolare bersaglio utilizzato.

¹Abbiamo già avuto modo di dire che i primi strati superficiali del metallo sono ossidati e non presentano caratteristiche metalliche.

Grazie alla tecnica di impiantazione, che in questo caso si presta alla produzione del bersaglio deuterato, è stato possibile soddisfare l'esigenza di cambiare la composizione del materiale senza alterarne le caratteristiche metalliche.

Il modello di *screening* proposto [28] per spiegare questo effetto è analogo a quello utilizzato in ambiente stellare. Nel plasma stellare, la materia è quasi completamente ionizzata e, a temperature che corrispondono a energie cinetiche dell'ordine dei keV, il mare di elettroni è descrivibile come un gas di particelle che seguono la statistica di Boltzmann. In queste condizioni, gli ioni positivi sono circondati da una nuvola elettronica delle dimensioni del raggio di Debye [39] che vale:

$$R_D = \sqrt{\frac{kT\epsilon_0}{e^2 \sum_j Z_j^2 n_{0j}}}$$

dove n_{0j} è la densità media di particelle di carica $Z_j e$. Nel caso in esame, il gas di elettroni è costituito dagli elettroni liberi del metallo, i quali circondano gli ioni di deuterio impiantati. Il raggio di schermatura risulta:

$$R_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 kT}{e^2 n_{eff} \rho_a}} = 69 \sqrt{\frac{T}{n_{eff} \rho_a}} \text{ m} \quad (4.3)$$

dove n_{eff} è il numero di elettroni di valenza per atomo, T è la temperatura del gas di elettroni (ossia del bersaglio) e ρ_a è la densità atomica in m^{-3} . Con i valori tipici dell'esperimento $T=293 \text{ K}$, $\rho_a = 6 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ e $n_{eff}=1$, si ottiene $R_D=1/10 a_B$, dove a_B è il raggio dell'atomo di Bohr. Se poniamo due deutoni a tale distanza R_D , la repulsione coulombiana risulta:

$$U_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R_D} = 300 \text{ eV}$$

ossia, si ottiene l'ordine di grandezza del potenziale di *screening* osservato nei metalli. Dalle misure di U_e , si ricava che per la maggior parte dei metalli $n_{eff} \approx 1$.

Un metodo alternativo per la determinazione di n_{eff} consiste nella misura del coefficiente $C_{Hall} = (e \cdot n_{eff}(Hall) \cdot \rho_a)^{-1}$ nell'effetto Hall. Le misure $n_{eff}(Hall)$ sono consistenti con quelle ricavate dalle misure di *electron screening* entro un fattore

2, fatta eccezione per i metalli nobili e pochi altri metalli [28]. Va osservato che $n_{eff}(\text{Hall})$ rappresenta il numero di elettroni disponibili alla conduzione ed è quindi un limite inferiore di $n_{eff}(\text{screening})$.

La reazione d+d è stata studiata anche al variare della temperatura del bersaglio [29]. Tale misura, oltre ad essere il primo esempio di studio di una reazione al variare della temperatura, costituisce un ulteriore test alla bontà del modello di *screening* di Debye applicato agli elettroni liberi nei metalli. In base alla (4.3), ci aspettiamo:

$$U_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R_D} = 2.09 \times 10^{-11} \sqrt{\frac{n_{eff}\rho_a}{T}} eV$$

ossia una dipendenza $U_e(T) \propto 1/\sqrt{T}$. I potenziali di *screening* della reazione d+d indotta in un bersaglio in Pt, alle due temperature di 20°C e 300°C, sono in accordo con tale previsione. In Figura 4.3, sono riportati gli andamenti dei fattori astrofisici per entrambe le temperature.

Va, infine, sottolineato, a conferma del fatto che lo *screening* sembra essere una caratteristica intrinseca del metallo e non legata alla reazione d(d,p)t studiata, che lo stesso effetto di *screening* è stato misurato anche in altre reazioni indotte in ambiente metallico, come la ${}^7\text{Li}(p, \alpha)\alpha$ e la ${}^6\text{Li}(p, \alpha){}^3\text{He}$ [48].

4.2 La vita media del ${}^7\text{Be}$ nei metalli come test della validità del modello di Debye

Abbiamo visto che nel modello di *screening* di Debye-Drude, gli elettroni liberi si dispongono intorno ai nuclei di deuterio a distanze molto più piccole del raggio atomico. In questo modo possono efficacemente schermare la carica nucleare e rendere conto dell'intensità dell'incremento del potenziale di *screening*. Inoltre, il modello di Debye prevede correttamente la dipendenza del potenziale U_e dalla temperatura.

Sebbene tutto funzioni “come se” gli elettroni metallici costituissero un gas di particelle a temperatura T con una distribuzione delle energie di Maxwell-Boltzmann, tale

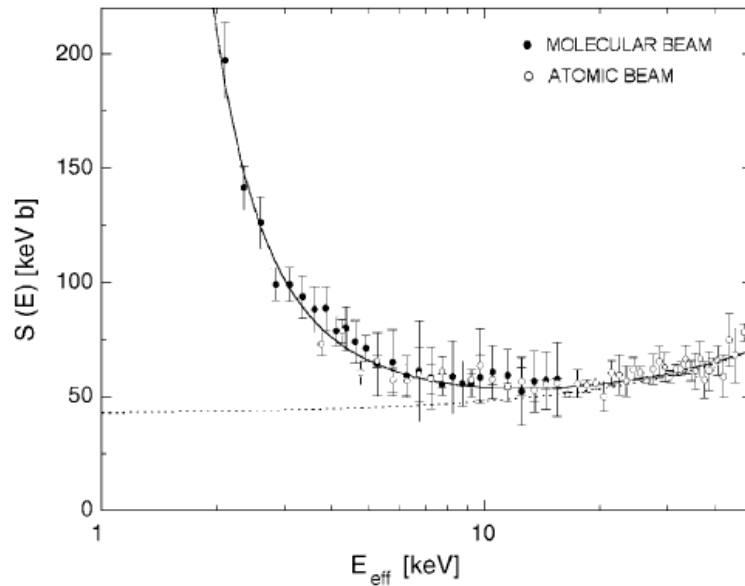


Figura 4.2: Fattore astrofisico $S(E)$ della reazione $d(d,p)t$ indotta in un bersaglio di Tantalio deuterato alla temperatura di $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$. Dal fit della curva si ottiene un potenziale di *screening* pari a 309 eV [30].

descrizione si scontra con la natura intimamente quantistica degli elettroni nei metalli: molte proprietà come, ad esempio, il congelamento dei gradi di libertà elettronici nel calcolo del calore specifico o il fatto che le onde di materia elettroniche si propagano liberamente nel metallo senza essere deflesse da altri elettroni o dagli ioni del reticolo cristallino, non possono essere spiegate in termini di gas di particelle classiche. Un'interpretazione teorica soddisfacente, nell'ambito della fisica quantistica, del comportamento degli elettroni liberi nei metalli, alla luce delle evidenze sperimentali della reazione di fusione $d+d$ in ambiente metallico, resta ad oggi una questione aperta. Il ${}^7\text{Be}$, radionuclide che decade in ${}^7\text{Li}$ unicamente per cattura elettronica, può costituire una buona sonda nucleare per verificare la validità del modello di Debye. La probabilità di cattura è infatti proporzionale alla densità elettronica nel nucleo. Se tale densità viene alterata dalla presenza di elettroni quasi liberi nel metallo, la probabilità di decadimento del ${}^7\text{Be}$ e, quindi, la sua vita media, possono dipendere dal

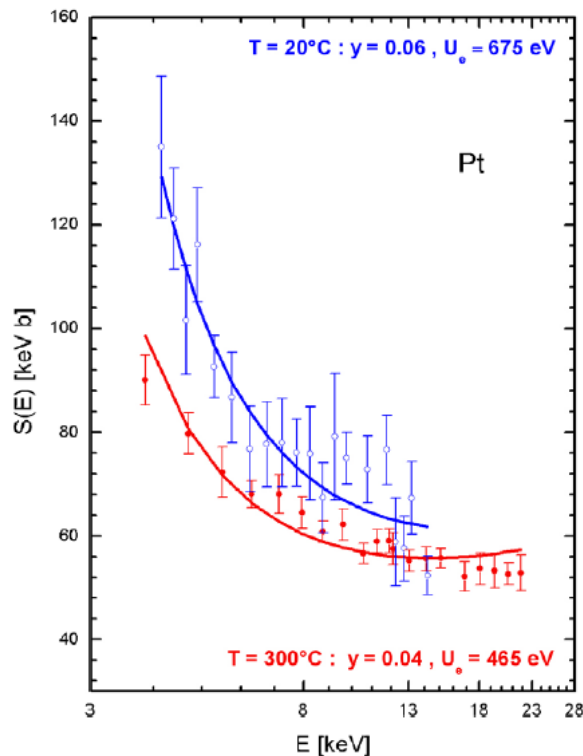


Figura 4.3: Fattore astrofisico della reazione $d(d,p)t$ indotta in un bersaglio in Pt alle due temperature del bersaglio di 20 °C e 300 °C. L'andamento con la temperatura del fattore astrofisico è in accordo con il modello di *screening* di Debye applicato agli elettroni liberi nei metalli [29].

particolare ambiente metallico in cui esso si trova. Dalle misure riportate in Tabella 3.3 non sono state osservate sensibili variazioni della vita media del ^7Be impiantato in differenti ambienti metallici, lasciando ipotizzare che gli elettroni liberi, in tale sistema non possono essere catturati.

Per cercare di chiarire quali siano le implicazioni che i vari modelli di *screening* elettronico comportano nella cattura elettronica del ^7Be in ambiente metallico, saranno utilizzati i seguenti modelli:

- Modello astrofisico (che chiameremo di Debye) (§4.3). Analogamente a quanto si fa nel caso del plasma stellare, gli elettroni liberi nei metalli saranno trattati

come gas di particelle che seguono la statistica di Boltzmann. Tale modello sta alla base dell'interpretazione dei dati sull'*electron screening* nella reazione d+d indotta in ambiente metallico.

- Modello di stato solido (§4.4). Gli elettroni di valenza nei metalli sono trattati come un gas di fermioni non interagenti alla temperatura dello zero assoluto².

In entrambi i casi, bisogna tener conto sia della cattura di elettroni orbitali legati del ${}^7\text{Be}$, sia di quelli metallici appartenenti allo spettro continuo. Va contemporaneamente considerato anche l'effetto di schermatura della carica nucleare degli elettroni quasi liberi sugli elettroni legati del ${}^7\text{Be}$ da una parte, e quello degli elettroni orbitali su quelli liberi dall'altra.

Uno studio teorico completo sulla cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ in ambiente stellare (solare, in particolare) è stato condotto da Bahcall [41]. Poiché nel plasma solare la probabilità di trovare ${}^7\text{Be}$ solo parzialmente ionizzato non è trascurabile, egli calcola entrambe le probabilità di cattura di elettroni liberi e legati e stima gli effetti di schermatura reciproci. Per quanto riguarda, quindi, lo studio della cattura elettronica di un gas che segue la statistica di Boltzmann, saranno applicati i risultati ottenuti da Bahcall per la cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ nel plasma stellare al caso terrestre, cambiando i due parametri della densità elettronica e della temperatura. Per quanto riguarda invece la cattura di elettroni che seguono la statistica di Fermi-Dirac, sarà applicato il modello di gas di fermioni altamente degenere.

4.3 Lo screening nel modello di Debye

Vogliamo ora calcolare il tasso di cattura elettronica di un atomo di ${}^7\text{Be}$ in ambiente metallico, cioè immerso in un plasma di elettroni liberi. La costante di decadimento dovuto alla cattura misurata in laboratorio, λ_{lab} , è in linea di principio somma di due contributi, vale a dire la cattura di elettroni orbitali del ${}^7\text{Be}$ (λ_{bound}) e la cattura di

²Vedremo che la distribuzione di stati degli elettroni in un metallo a temperatura ambiente non varia sensibilmente rispetto allo zero assoluto

elettroni liberi del metallo (λ_{free}):

$$\lambda_{lab} = \lambda_{bound} + \lambda_{free}$$

La λ_{lab} è stata misurata in 4 campioni di Pd, Zr, W e Ta, in cui il ${}^7\text{Be}$ è stato incorporato tramite la tecnica di impiantazione ionica (Tabella 3.3). Non è possibile separare sperimentalmente la parte di cattura di elettroni orbitali da quella di elettroni liberi. Si vuole qui ricavarne una stima teorica nelle ipotesi in cui gli elettroni di valenza del metallo costituiscano un gas di particelle cariche non interagenti all'equilibrio termico, che seguono la statistica di Boltzmann (questo è il modello di Debye/Drude che dà una spiegazione dell'*electron screening* nei metalli deuterati). In queste ipotesi, possiamo utilizzare le espressioni della λ di cattura ricavate da Bahcall in ambiente solare. Nel sole, infatti, esistono, immersi in un gas di elettroni liberi, atomi di ${}^7\text{Be}$ completamente ionizzati e, in misura minore, atomi parzialmente ionizzati. Bahcall ricava, inoltre, i fattori di schermatura della carica nucleare degli elettroni liberi su quelli legati e viceversa, nell'approssimazione di *screening* di Debye-Hückel, valida per particelle cariche classiche. La costante di decadimento λ dovuta alla cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ (si veda §3.4) si può scrivere come [26][42]³:

$$\lambda = \frac{G_\beta^2 (W + W_0)^2 \xi F(Z, W)}{2\pi V} \quad (4.4)$$

dove G_β è la costante di accoppiamento β ; V è il volume in cui si trova l'elettrone; $W + W_0$ è l'energia totale rilasciata nel decadimento (trascurando il rinculo del ${}^7\text{Li}$), dove W è l'energia dell'elettrone catturato e W_0 è il Q valore, ossia la differenza delle masse a riposo del ${}^7\text{Be}$ e ${}^7\text{Li}$, che è pari a 862 keV;

$$\xi = \langle 1 \rangle^2 + (C_A^2 / C_V^2) \langle \sigma \rangle^2 \quad (4.5)$$

è la combinazione di elementi di matrice ridotta nucleare; $F(Z, W)$ è il rapporto tra la densità elettronica nel nucleo calcolata con la funzione d'onda piana distorta dal campo coulombiano del nucleo di carica Z e quella calcolata con la funzione d'onda piana [42],[43].

³Per il calcolo di λ_{free} e λ_{bound} saranno utilizzate le unità atomiche $\hbar = m_e = c = e = 1$.

L'energia dell'elettrone catturato può essere:

$$W = \begin{cases} 1 - |E'_x| - E_R & \text{elettrone legato nella shell } x \\ 1 + E_{free} & \text{elettrone libero con energia } E_{free} \end{cases} \quad (4.6)$$

dove E'_x è l'energia di legame dell'elettrone nella shell x del nucleo figlio, E_R è l'energia di riarrangiamento media dovuta alla non perfetta sovrapposizione delle orbite elettroniche atomiche tra i nuclei padre e figlio.

4.3.1 La cattura dal continuo

Calcoliamo ora λ_{free} , supponendo che un nucleo di ${}^7\text{Be}$ completamente ionizzato si trovi in un gas di elettroni liberi, cioè un gas di fermioni non interagenti a temperatura T . Applicando la statistica di Fermi-Dirac al gas di fermioni, la (4.4) si può scrivere [42] [43]:

$$\lambda_{free} = G_\beta^2 \xi K / 2\pi^3 \quad (4.7)$$

dove:

$$K = \int_0^\infty dp p^2 \frac{F(Z, W)(W_0 + W)^2}{1 + e^{\frac{-\mu + W}{kT}}} \quad (4.8)$$

indicando con p l'impulso dell'elettrone e μ il potenziale chimico. La funzione $F(Z, W)$ si può approssimare come segue, nelle ipotesi che $\alpha^2 Z^2 \ll 1$ e che la velocità media dell'elettrone non sia relativistica, condizioni che sono soddisfatte:

$$F(Z, W) \cong \frac{2\pi\eta}{1 - e^{-2\pi\eta}} \quad (4.9)$$

dove:

$$\eta = (\alpha Z)c/v \quad (4.10)$$

e v è la velocità dell'elettrone catturato. Sostituiamo a v il suo valore medio, che si ricava dal teorema di equipartizione, nel limite in cui la statistica di Fermi-Dirac si approssima a quella di Boltzmann. F dipenderà dalla temperatura T tramite la:

$$\eta \cong \alpha Z (mc^2 / 3kT)^{\frac{1}{2}} \quad (4.11)$$

Se $2\pi\eta \gg 1$, vale l'approssimazione:

$$F(Z, W) \cong \alpha Z (2\pi) \left(\frac{mc^2}{3kT} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4.12)$$

Infine, se $2\pi\alpha Z \langle v^{-1} \rangle_{av} \gg 1$, $\alpha^2 Z^2 \ll 1$ e $kT \ll mc^2$, il fattore statistico K si approssima come [43]:

$$K_B \cong \pi\alpha Z n_e (2\pi)^{3/2} (kT)^{-1/2} q^2 \quad (4.13)$$

dove $q = (W_0 + W)$ che coincide in unità atomiche al momento del neutrino emesso. Per $Z=4$ e a temperatura ambiente, in cui $q \gg kT$, tale approssimazione è valida. Si ottiene, quindi, che la λ_{free} di cattura del ${}^7\text{Be}$ in un gas di elettroni che seguono la statistica di Boltzmann e in cui il numero di elettroni per unità di volume è n_e , risulta:

$$\lambda_{free} = \sqrt{\frac{2}{\pi kT}} G_\beta^2 \alpha Z n_e q^2 \xi \quad (4.14)$$

4.3.2 La cattura di elettroni legati

Consideriamo ora la cattura di un elettrone legato dell'atomo di ${}^7\text{Be}$ nelle ordinarie condizioni di pressione e temperatura. La (4.4) è stata calcolata con precisione per ogni elettrone orbitale di numeri quantici n e k , dove n indica il numero quantico principale e k è definito come [45]:

$$k = \begin{cases} l, & j = l - \frac{1}{2} \\ -(l+1), & j = l + \frac{1}{2} \end{cases} \quad (4.15)$$

Il ${}^7\text{Be}$ ha solo elettroni con $k = -1$ (cioè di tipo s). La transizione nucleare per cattura di tali elettroni è classificata come “permessa” [26] (più alti valori del momento angolare comportano un ritardo nella cattura, dovuto alla repulsione centrifuga). La λ_{bound} si scrive:

$$\lambda_{bound} = G_\beta^2 q^2 \xi |\psi_{n,k}(0)|^2 / 2\pi \quad (4.16)$$

dove

$$|\psi_{n,-1}(0)|^2 = \frac{g_{n,-1}^2(0)}{4\pi} \quad (4.17)$$

e la $g_{n,-1}$ è la parte radiale della funzione d'onda dell'elettrone. Nel caso del ${}^7\text{Be}$ che ha configurazione elettronica $(1s_{1/2})^2(2s_{1/2})^2$, la λ_{bound} di cattura totale di uno qualunque dei 4 elettroni orbitali è:

$$\begin{aligned} \lambda_{bound} &= G_\beta^2 q^2 \xi \frac{2|\psi_{1,-1}(0)|^2 + 2|\psi_{2,-1}(0)|^2}{2\pi} \\ &= G_\beta^2 q^2 \xi \frac{[g_{1,-1}^2(0) + g_{2,-1}^2(0)]}{4\pi^2} \end{aligned} \quad (4.18)$$

Le funzioni g tra parentesi sono state calcolate in maniera molto precisa, considerando la dimensione finita del nucleo, varie forme della distribuzione di carica nucleare, varie distribuzioni elettroniche per il potenziale autoconsistente (Hartree-Fock-Slater o Thomas-Fermi-Dirac), il contributo del potenziale di scambio, la forma dettagliata della funzione d'onda elettronica all'interno del volume nucleare e l'*electron screening* dovuto agli altri elettroni legati [45]. Bahcall calcola l'effetto della non perfetta sovrapposizione tra funzioni d'onda iniziali e finali di tutti gli elettroni atomici ed il contributo del potenziale di scambio, ottenendo che per il ${}^7\text{Be}$ l'effetto complessivo è minore dell'1% [41]. All'1% di accuratezza, infine, le funzioni radiali del ${}^7\text{Be}$ in un campo autoconsistente con potenziale di scambio valgono (in unità atomiche) [43]:

$$\begin{aligned} g_{1,-1}(0) &= 14.67, \\ g_{2,-1}(0) &= 2.67 \end{aligned} \quad (4.19)$$

Il valore di $[(4\pi^2)^{-1}][g_{1,-1}^2(0) + g_{2,-1}^2(0)]$ è 2.19×10^{-6} .

4.3.3 La cattura totale e gli effetti di screening

Abbiamo ora tutti gli strumenti per calcolare quanto contribuisce la cattura di un elettrone libero (λ_{free}), rispetto alla cattura totale misurata in laboratorio, supponendo che non vi siano effetti di schermatura, cioè:

$$\frac{\lambda_{free}}{\lambda_{lab}} = \frac{\lambda_{free}}{\lambda_{free} + \lambda_{bound}} \quad (4.20)$$

La λ_{free} è data dall'espressione (4.14), mentre la λ_{bound} è la (4.18). La cattura elettronica può avvenire sia allo stato fondamentale, sia al primo stato eccitato a 478 keV del ${}^7\text{Li}$. Entrambi i contributi della λ_{lab} constano quindi a loro volta di due termini che differiscono per l'elemento di matrice nucleare ξ e per il momento del neutrino emesso q . Ad esempio, la λ_{bound} totale è:

$$\lambda_{bound} = \frac{G_\beta^2}{4\pi^2} [g_{1,-1}^2(0) + g_{2,-1}^2(0)] (\xi q^2 + \xi^* q^{2*}) \quad (4.21)$$

dove ξ e q sono rispettivamente elemento di matrice nucleare e momento del neutrino emesso per il decadimento allo stato fondamentale del ${}^7\text{Li}$ e ξ^* e q^* gli analoghi per il decadimento allo stato eccitato. L'espressione $(\xi q^2 + \xi^* q^{2*})$ compare anche in λ_{free} e nel rapporto (4.20) scompare. Quest'ultimo risulta quindi:

$$\frac{\lambda_{free}}{\lambda_{lab}} = \frac{\sqrt{\frac{2}{\pi k T}} \alpha Z n_e}{\sqrt{\frac{2}{\pi k T}} \alpha Z n_e + (4\pi^2)^{-1} [g_{1,-1}^2(0) + g_{2,-1}^2(0)]} \quad (4.22)$$

o più semplicemente:

$$\begin{aligned} \frac{\lambda_{lab}}{\lambda_{free}} &= 1 + \frac{(4\pi^2)^{-1} [g_{1,-1}^2(0) + g_{2,-1}^2(0)]}{\sqrt{\frac{2}{\pi k T}} \alpha Z n_e} \\ &= 1 + 8.58 \times 10^{-5} \frac{\sqrt{k T}}{n_e} \end{aligned} \quad (4.23)$$

dove n_e è il numero di elettroni liberi per cm^{-3} .

Supponendo che alla $\lambda_{lab}^{-1} = 6.65 \times 10^6 \text{s}$ contribuiscano solo gli elettroni orbitali del ${}^7\text{Be}$ e quindi utilizzando la sola espressione (4.18), Bahcall inoltre valuta la λ_{free} senza considerare gli effetti di schermatura [43]:

$$\lambda_{free} = 1.02 n_e T^{-1/2} \times 10^{-29} \text{sec}^{-1} \quad (4.24)$$

Tabella 4.1: Potenziale di *screening* U_e e numero di elettroni liberi per atono n_{eff} e per cm^3 ricavati dalle misure di fusione d+d [27] e tempo di dimezzamento del 7Be impiantato nei relativi materiali [21].

Materiale	U_e (eV)	n_{eff}	$n_e[10^{22}cm^{-3}]$	$T_{1/2}$ (gg)
Pd	800 ± 90	6.3 ± 1.3	42.6	53.14 ± 0.12
Ta	270 ± 30	0.9 ± 0.2	4.98	52.67 ± 0.36
W	250 ± 30	0.7 ± 0.2	4.40	53.32 ± 0.21
Zr	≤ 40	-	-	53.04 ± 0.15

Le misure di *electron screening* danno una stima del numero di elettroni liberi per atomo disponibili nel metallo [27]. Tali stime variano da meno di 1 a 11 nel caso estremo del Sb e sono compatibili con i valori ricavati dalle misure dell'effetto Hall [27]. Consideriamo i materiali in cui è stata misurata la vita media del 7Be , vale a dire Ta, W, Pd, Zr. Per i primi tre, che presentano natura metallica, è stato evidenziato [27] un grande effetto di schermatura nella reazione d+d, cioè il potenziale di *screening* U_e risulta molto più elevato di quello misurato nel deuterio gassoso, dove $U_e = 25$ eV; l'effetto dello *screening*, invece, è piccolo in Zr, appartenente al quarto gruppo della tavola periodica (si veda la Tabella 4.1). I valori n_{eff} sono riportati in Tabella 4.1 insieme ai valori misurati della vita media del 7Be impiantato nei relativi materiali.

Posto $T=293$ K e che il numero di elettroni liberi è:

$$n_e = n_{eff} \frac{N_A \rho}{M} \quad (4.25)$$

dove ρ è la densità del materiale N_A il numero di Avogadro, e M la massa molare, possiamo calcolare la (4.24).

In Tabella 4.2, sono riportate le stime del contributo percentuale al decadimento totale dovuto agli elettroni liberi, nelle ipotesi di assenza di effetti di schermaggio

Tabella 4.2: Contributo percentuale alla cattura da parte degli elettroni liberi del metallo in assenza di effetti di *screening* tra elettroni e raggio di Debye.

Materiale	$\lambda_{free}/\lambda_{lab}(\%)$	$R_D(T=293\text{ K})[\text{pm}]$	R_D/a
Pd	56.2	1.8	0.14
Ta	13.0	5.3	0.40
W	11.7	5.6	0.42
Zr	-	-	-

reciproco tra elettroni liberi e legati. Come si vede, il tempo di dimezzamento $T_{1/2}$ del ^7Be nel Palladio dovrebbe diminuire del 56% rispetto a quello dello Zirconio, che non ha, in base alle misure di fusione d+d, elettroni liberi disponibili per lo *screening*. Tale risultato è evidentemente non corretto. D'altra parte, Iben et al. osservarono che nelle condizioni del plasma solare lo *screening* della carica nucleare da parte degli elettroni liberi riduce la densità degli elettroni legati del 18% [valore calcolato da Bahcall, in base al modello di Iben per $R/R_\odot=0.06$ e l'inverso della temperatura $\beta=0.0215$].

Valutiamo tale fattore nel caso in esame. La prima cosa da chiedersi è se esistono stati legati per il ^7Be nelle condizioni del plasma di Debye metallico a temperatura ambiente. Iben et al.[47] hanno integrato la equazione di Schroedinger (4.26) di un elettrone che interagisce con una carica $+4e$ schermata da elettroni in approssimazione di *screening* di Debye-Hückel:

$$H\psi = \left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 - \frac{4e^2 e^{-r/R}}{r}\right]\psi = E\psi \quad (4.26)$$

dove R è il raggio di *screening* di Debye. I risultati di questo calcolo sono mostrati in Figura 4.7. La quantità C_R^2 è il rapporto tra il modulo quadro della funzione d'onda dello stato fondamentale valutata nell'origine e la prima funzione d'onda idrogenoide del ^7Be e rappresenta il fattore di riduzione della cattura elettronica di un elettrone

della shell K a causa dello *screening* degli elettroni liberi. Il rapporto R/a , dove $a = a_B/4 = 13.2 \text{ pm}$ e a_B è il primo raggio di Bohr, è minore di uno in un intervallo che va da 1 a 8 in unità di R/a . Inoltre, l'energia di legame dello stato fondamentale del ${}^7\text{Be}^{3+}$ si annulla quando $R/a < 1$.

Il raggio R di *screening* di Debye, definito in (4.1), per un metallo di densità $\rho_a [\text{atomi}/\text{m}^3]$ con n_{eff} elettroni liberi per atomo a temperatura $T[\text{K}]$, vale:

$$\begin{aligned} R_D &= \sqrt{\frac{kT\epsilon_0}{e^2 n_{eff} \rho_a}} \\ &= 69 \sqrt{\frac{T}{n_{eff} \rho_a}} \quad \text{m} \end{aligned} \quad (4.27)$$

Nei metalli considerati, R_D è dell'ordine di 10^{-12} m (vedi Tabella 4.2). In base ai calcoli di Iben, la probabilità di trovare elettroni legati al nucleo di ${}^7\text{Be}$, quando questo è immerso in un plasma di elettroni che seguono la statistica di Boltzmann, è nulla e la cattura può avvenire solo da parte degli elettroni del continuo. In questa ipotesi, applicando direttamente la formula (4.24) utilizzata da Bahcall per la cattura di elettroni liberi nel sole, si vede che la λ_{free} dovrebbe variare linearmente con n_e e quindi, la $T_{1/2}$ del Palladio dovrebbe essere 10 volte inferiore a quella del Tantalio. I risultati sulla vita media nei metalli lasciano supporre, al contrario, che la cattura in ambiente metallico non sia affatto influenzata da una variazione della densità elettronica n_e , almeno entro gli errori sperimentali dello 0.4 %.

In conclusione, quindi, il modello di Debye, se da una parte spiega con successo tutti i dati sperimentali dell'*electron screening* nei metalli, non è adeguato, in assenza di ulteriori ipotesi, a spiegare perchè la cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ nei metalli non viene influenzata dagli elettroni liberi.

4.4 La cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ in un gas di fermioni

In un metallo, la struttura reticolare atomica disaccoppia i gradi di libertà degli ioni da quelli degli elettroni nella banda di conduzione per via dei differenti tempi di scala di questi sistemi (i tempi di scala degli ioni sono associati all'inverso della frequenza di oscillazione delle vibrazioni reticolari che sono molto più grandi di \hbar/E_F , ordine di grandezza dei tempi caratteristici degli elettroni). Inoltre, per via del principio di esclusione di Pauli, in prima approssimazione, è possibile trascurare anche le interazioni elettrone-elettrone perchè tutti gli elettroni che hanno energia minore dell'energia di Fermi non possono né perdere né acquistare energia, per via della occupazione dei relativi stati da parte di altri elettroni. Per questi motivi, possiamo descrivere il mare di elettroni liberi nel metallo, al livello di approssimazione più basso, come un gas di fermioni non interagenti. E' tramite questo modello che è possibile spiegare il comportamento della capacità termica nei metalli, in cui i gradi di libertà elettronici sono congelati, o la suscettività paramagnetica degli elettroni di conduzione, o ancora, l'esistenza dei lunghi cammini medi degli elettroni rispetto alle distanze interatomiche (fino a $\sim 1\text{cm}$).

4.4.1 Gas di fermioni non interagenti

Supponiamo che gli elettroni costituiscano un gas di fermioni non interagenti tra loro e descritti da onde piane $\Psi \sim e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$. Inizialmente, sia inoltre $T=0\text{ K}$. Il potenziale periodico degli ioni può essere considerato una perturbazione quando \vec{k} è piccolo, cioè per $\lambda \gg a$, dove a è la distanza reticolare. Il potenziale reticolare può essere quindi approssimato ad una scatola di dimensioni L . La conseguenza principale dovuta a queste condizioni al contorno è che le energie accessibili, così come i \vec{k} , sono discreti e, per via del principio di esclusione di Pauli, i livelli si riempiono fino ad una energia massima che si definisce energia di Fermi E_F del sistema, che corrisponde a un $|\vec{k}_F|$ massimo tale che:

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m} |k_F|^2 \quad (4.28)$$

$|k_F|$ definisce nello spazio degli impulsi una sfera, al cui interno ci sono tutti i \vec{k} occupati (si veda la Figura 4.4). La densità di elettroni per unità di volume e di energia è:

$$\frac{dn}{dE} = \rho(E) f_{FD}(E) = \frac{8\sqrt{2}\pi m^{3/2}}{h^3} \sqrt{E} \cdot \frac{1}{e^{(E-E_F)/kT} + 1} \quad (4.29)$$

dove f_{FD} è la distribuzione di probabilità di Fermi-Dirac e $\rho(E)$ è la densità di stati (in Figura 4.4 con il nome $D(E)$). Se integriamo tale espressione rispetto all'energia che varia tra 0 e $+\infty$, otteniamo il numero di elettroni per unità di volume nel metallo. La dipendenza di E_F dalla densità di elettroni n si ottiene integrando la (4.29), supponendo che la probabilità di occupazione sia allo zero assoluto 1 per tutte le energie tra 0 e E_F e 0 altrove:

$$\begin{aligned} E_F &= \frac{(hc)^2}{8mc^2} \left(\frac{3}{\pi}\right)^{2/3} n^{2/3} \\ &= 3.65 \times 10^{-15} n^{2/3} \text{ cm}^2 \text{ eV} \end{aligned} \quad (4.30)$$

Le energie di Fermi per i metalli in studio sono state calcolate utilizzando i valori n_e in Tabella 4.1 e sono riportate in Tabella 4.3, insieme alle relative temperature di Fermi T_F definite tramite la relazione: $E_F = kT_F$. A temperature finite, $T \neq 0$, alcuni stati saranno termicamente eccitati. L'energia termica di eccitazione, dell'ordine di kT , è disponibile solo per gli elettroni che si trovano sulla superficie della sfera di Fermi, o, meglio, per gli elettroni con E nell'intervallo $E_F - kT < E < E_F + kT$. La f_{FD} cambierà conseguentemente (vedi Figura 4.5). Va detto, tuttavia, che a temperatura ambiente $kT \ll E_F$ e la f_{FD} risulterà modificata solo per una piccola frazione di elettroni dell'ordine di $kT/E_F < 0.001$.

4.4.2 Lo screening di Thomas-Fermi

Supponiamo ora di introdurre un difetto nella struttura reticolare metallica, ad esempio un atomo fortemente elettronegativo. L'effetto di questo atomo sarà di attrarre a

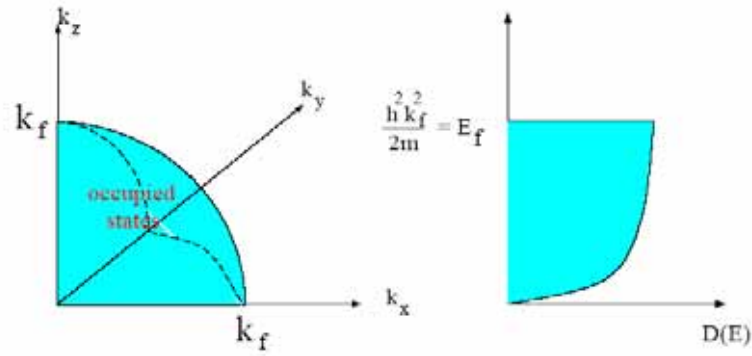


Figura 4.4: La sfera di Fermi dei \vec{k} occupati fino a k_F e l'andamento della densità degli stati in funzione della energia.

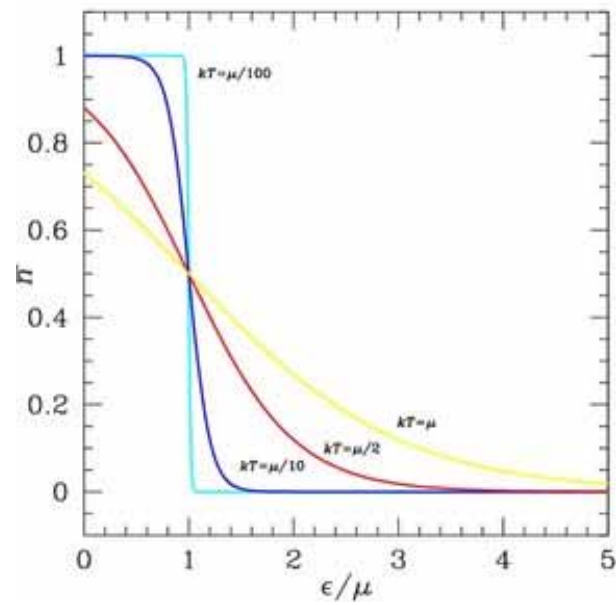


Figura 4.5: La funzione di Fermi-Dirac in funzione di kT . A temperatura ambiente, solo una piccola frazione di elettroni saranno eccitati termicamente, perchè $kT/\mu \cong kT/E_F \ll 1$.

Tabella 4.3: Energia di Fermi, temperatura di Fermi, raggio di *screening* di Thomas-Fermi ed il rapporto tra quest'ultimo e il raggio a della funzione idrogenoide dello stato fondamentale del ${}^7\text{Be}$.

Materiale	$E_F(\text{eV})$	$T_F[10^4 \text{ K}]$	$R_{TF}[\text{pm}]$	R_{TF}/a
Pd	20.7	24.0	40.4	3.1
Ta	4.9	5.78	58.3	4.4
W	4.5	5.22	59.5	4.5
Zr	-	-	-	-

sé uno o più elettroni. In vicinanza del difetto, quindi, la densità di carica elettronica ed il potenziale elettrostatico sarà ridotto. La parabola in Figura 4.4, che esprime la densità degli stati in funzione dell'energia, traslerà verso l'alto di una quantità $-e\delta U$ ed alcuni elettroni liberi fluiranno lontano dal difetto. La densità di stati in prossimità e lontano dal difetto si scrivono:

$$\begin{aligned} n(\vec{r}_{near}) &\approx \int_0^{E_F + e\delta U(\vec{r}_{near})} \rho(E) dE \\ n(\vec{r}_{away}) &\approx \int_0^{E_F} \rho(E) dE \end{aligned} \quad (4.31)$$

Se $|e\delta U| \ll E_F$, allora la variazione $\delta n(\vec{r}) = n(\vec{r}_{near}) - n(\vec{r}_{away})$ si scrive:

$$\delta n(\vec{r}) \approx \rho(E_F)(E_F + e\delta U - E_F) = e\delta U \rho(E_F) \quad (4.32)$$

Il potenziale elettrostatico generato da questa densità di carica si ricava con l'equazione di Poisson:

$$\nabla^2 \delta U = 4\pi \delta \rho = 4\pi e \delta n = 4\pi e^2 \rho(E_F) \delta U \quad (4.33)$$

Posto $\lambda^2 = 4\pi \rho(E_F)$, allora l'equazione di Poisson ha soluzione:

$$\delta U(\vec{r}) = \frac{qe^{-\lambda r}}{r} \quad (4.34)$$

La lunghezza $1/\lambda = R_{TF}$ è nota come la lunghezza di *screening* di Thomas-Fermi:

$$R_{TF} = \frac{1}{\sqrt{4\pi e^2 \rho(E_F)}} = \frac{a_0 \pi}{3(3\pi^2 n)^{1/3}} \quad (4.35)$$

In Tabella 4.3, sono riportati i valori della lunghezza di *screening* che è per un metallo ordinario pari a frazioni di Å. Come si vede anche dalla Figura 4.6, il numero di livelli discreti atomici dipende dalla dimensione del raggio di *screening*.

Questo effetto ha una grande importanza nel caso della cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ in ambiente metallico. Le dimensioni dello *screening* di Thomas-Fermi sono circa un ordine di grandezza maggiori di quelle di Debye e circa 3-4 volte il primo raggio idrogenoide del ${}^7\text{Be}$ (a). Riconsideriamo allora il lavoro di Iben, che calcola le energie di stato fondamentale del ${}^7\text{Be}$ in un potenziale schermato. La forma del potenziale è la stessa sia per lo *screening* di Debye-Hückel, sia per quello di Thomas-Fermi ed i risultati di questo calcolo si applicano ad entrambi i casi. In Tabella 4.3, si riportano i rapporti R_{TF}/a che per i metalli considerati variano da 3 a 4.5. Come si vede dalla Figura 4.7, $C_{EXACT}^2 = |\psi_R(0)/\psi_1(0)|^2$ mostra che la funzione d'onda dello stato fondamentale del ${}^7\text{Be}$ nell'origine si riduce per via dello *screening* del 85-90% rispetto al caso non schermato. Gli stessi calcoli sono stati, d'altra parte, sviluppati da Bahcall [44] che valuta la riduzione della cattura elettronica del ${}^7\text{Be}$ dovuta allo *screening* degli elettroni liberi nel sole, dove $R_D = 0.45/a = 3.4$, ottenendo un fattore di riduzione pari al 15%.

Per quanto riguarda le energie del ${}^7\text{Be}^{2+}$, Iben riporta solo una stima approssimata, supponendo che la densità elettronica dell'altro elettrone K sia soppressa dello stesso fattore (è questa una sottostima perchè non si tiene conto della schermatura dell'altro elettrone). Non ci sono stime per il fattore di soppressione degli elettroni L. Va osservato, tuttavia, che la cattura dalla shell L, in base alle espressioni riportate in (4.18) e (4.19), costituisce solo il 3% della cattura totale. Volendo dare un limite superiore, possiamo ipotizzare che la densità elettronica totale sul nucleo dovuta a tutti gli elettroni del ${}^7\text{Be}$ sia ridotta dello stesso fattore F_{Iben} (in Tabella 4.4) calcolato per il ${}^7\text{Be}^{3+}$ (4.18).

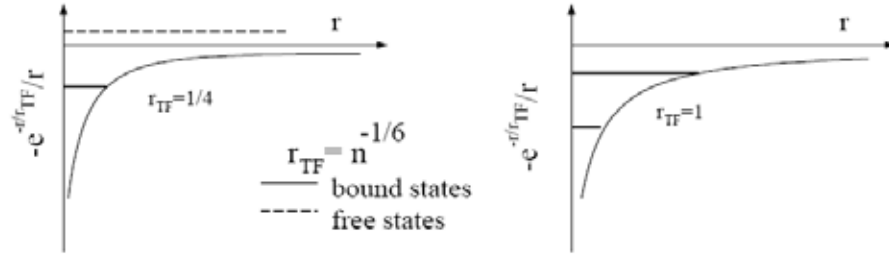


Figura 4.6: Potenziale schermato di Thomas-Fermi in prossimità di un difetto.

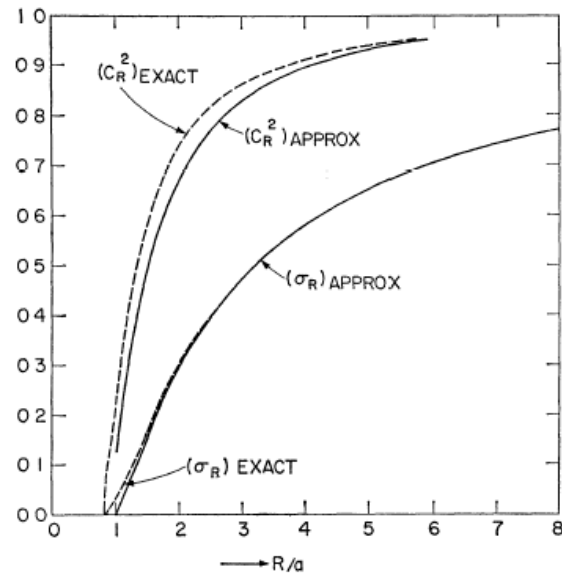


FIG. 1.—Properties of the ground state of the triply ionized Be^7 atom as a function of screening radius R . R is scaled in units of $a = 0.528 \times 10^{-8} \text{ cm}/4 = \text{first Bohr radius of the unscreened triply ionized atom}$. $C_R^2 = |\psi_R(0)/\psi_1(0)|^2$ and $\sigma_R = -E_R/\chi_1$. Approximate results are obtained with the variational technique.

Figura 4.7: Calcolo dell'energia e della funzione d'onda dello stato fondamentale di un nucleo di ^7Be in un potenziale nucleare schermato con lunghezza di *screening* pari a R [47].

$$\lambda_{bound}^{metal} = F_{Iben} \times \lambda_{bound} \quad (4.36)$$

Resta, infine, da valutare il contributo alla cattura elettronica degli elettroni liberi in un plasma di fermioni altamente degenere, λ_{free}^{metal} . Per fare questo, torniamo alla espressione generale della cattura elettronica di un nucleo di carica Z in un gas di fermioni a temperatura T : $\lambda = G_\beta^2 \xi K / 2\pi^3$. Avevamo approssimato il fattore K :

$$K = \int_0^\infty dp p^2 \frac{F(Z, W)(W_0 + W)^2}{1 + e^{\frac{-\mu + W}{kT}}} \quad (4.37)$$

a K_B , applicando la statistica di Boltzmann. Cerchiamo di trovare ora una espressione approssimata di K , applicando la statistica di Fermi-Dirac.

La $F(Z, W)$ si può approssimare anche in questo caso come:

$$F(Z, W) \cong \frac{2\pi\eta}{1 - e^{-2\pi\eta}} \quad (4.38)$$

dove $\eta = \alpha Zc/v$. Avevamo sostituito a v il valore medio, calcolato in base al principio di equipartizione. In questo caso, invece, il valore medio della velocità si può ricavare dal valor medio dell'energia di un gas di fermioni, che vale $\langle E \rangle = \frac{3}{5}E_F$. La velocità media risulta quindi $\langle v \rangle = \sqrt{\frac{6}{5m}}E_F$. Questa espressione è valida per un gas di fermioni allo zero assoluto, ma, per quanto detto in precedenza, è corretta almeno allo 0.1%. La $F(Z, W)$ per le energie di Fermi dei metalli è circa:

$$F(Z, W) \cong 2\pi\eta \quad (4.39)$$

Infine, approssimiamo K come:

$$\begin{aligned} K &= \int_0^\infty \frac{dn_e}{dE} 2\pi\eta (W + W_0)^2 dE \\ &\cong (W + W_0)^2 \frac{2\pi\bar{\eta}}{1 - e^{-2\pi\bar{\eta}}} n_e \cong (W + W_0)^2 2\pi\bar{\eta} n_e \end{aligned}$$

Abbiamo qui considerato che la distribuzione di probabilità si possa approssimare a quella a $T=0$ K. Inoltre, abbiamo tirato fuori dall'integrale la quantità $(W + W_0)^2$

Tabella 4.4: Fattori di riduzione della densità elettronica sul nucleo dovuta agli elettroni di conduzione F_{Iben} ; contributo percentuale degli elettroni liberi alla cattura complessiva, considerando i fattori di schermo F_{Iben} .

Materiale	$F_{Iben}(\%)$	$\lambda_{free}^{metal}/\lambda_{lab}(\%)$
Pd	85	6.8
Ta	92	1.6
W	92	1.5
Zr	-	-

per la sua debole dipendenza dall'energia e sostituito a η , il suo valore calcolato in $v = \bar{v}$. La λ_{free}^{metal} risulta quindi:

$$\lambda = G_\beta^2 (W + W_0)^2 \xi 2\pi\alpha Z \sqrt{\frac{5}{6E_F}} n_e \quad (4.40)$$

Se poniamo $E_F = kT_F$ quest'ultima è simile alla relativa espressione trovata nel caso astrofisico, con la differenza che, a meno di un fattore, alla temperatura del gas di particelle classiche T_B va sostituita la temperatura di Fermi T_F . Applicando allora la precedente espressione (4.23) per il calcolo del contributo alla cattura degli elettroni liberi rispetto alla cattura totale, si ottengono i valori riportati in Tabella 4.4. In questi calcoli sono stati anche considerati i fattori di schermatura F_{Iben} .

$$\begin{aligned} \frac{\lambda_{lab}}{\lambda_{free}} &= 1 + F_{Iben} \frac{(4\pi^2)^{-1} [g_{1,-1}^2(0) + g_{2,-1}^2(0)]}{\sqrt{\frac{5}{6kT_F}} \alpha Z n_e} \\ &= 1 + 6.25 \times 10^{-5} \times F_{Iben} \frac{\sqrt{kT_F}}{n_e} \end{aligned} \quad (4.41)$$

dove n_e è il numero di elettroni liberi per cm^{-3} .

Le variazioni percentuali della costante di decadimento sono dell'ordine di qualche %, Va, tuttavia, ancora considerato il fattore di *screening* che vedono gli elettroni

liberi a causa del potenziale di quelli legati. Bahcall [46] calcola numericamente il potenziale di un elettrone del continuo che si muove nel campo coulombiano del ${}^7\text{Be}$ quando questo è schermato da parte di un elettrone legato:

$$(\nabla^2 - \frac{1}{R^2})\phi(r) = 4\pi e|\psi_{R_g}|^2 - 16\pi e\delta(r) \quad (4.42)$$

dove ψ_{R_g} è soluzione dello stato fondamentale dell'equazione (4.26) che include gli effetti dello *screening* del plasma di elettroni liberi. Una volta trovato il potenziale ϕ , viene nuovamente risolta l'equazione di Schroedinger per un elettrone che si muove in tale potenziale. Le soluzioni ψ_R , dipendenti dal raggio di schermatura R , sono state valutate per $1.2 < R/a < 5$ (abbiamo già osservato che i risultati trovati in condizioni di *screening* di Debye si applicano ugualmente allo *screening* di Thomas-Fermi). In tale intervallo, il fattore di riduzione della densità elettronica sul nucleo dovuto allo *screening* di un elettrone K sugli elettroni del continuo, F_{Bach} , risulta $< 2\%$. Questi risultati si applicano ancora una volta all'unico elettrone del ${}^7\text{Be}^{3+}$ e non ci sono stime per gli altri elettroni. Volendo dare un limite inferiore a questo effetto, considerando i soli elettroni della shell K (non abbiamo, infatti, elementi per valutare lo *screening* degli elettroni L sugli elettroni del continuo, sebbene non ci sia motivo di ritenere che questi elettroni schermano la carica nucleare in misura minore), esso può essere stimato come somma degli *screening* dei due elettroni K, cioè $F_{Bach} \leq 4\%$. I rapporti $\lambda_{free}^{metal}/\lambda_{lab}(\%)$ non diminuiscono sensibilmente anche considerando F_{Bach} , ma tale fattore di correzione andrebbe valutato in maniera più accurata. Questi risultati appaiono, tuttavia, anche nella loro approssimazione, molto più soddisfacenti dei risultati ottenuti con il modello di Debye.

4.5 Analisi e prospettive

Questo studio nasce dalle difficoltà di conciliare all'interno di un unico quadro coerente i risultati delle misure di reazioni e di decadimenti nucleari con la fisica dello stato solido, ambiente entro in quale tali processi nucleari sono indotti.

Le misure di fusione d+d dimostrano che gli elettroni liberi nei metalli sono responsabili di un abbassamento della barriera coulombiana di una quantità U_e che mediamente è ≈ 300 eV. Tralasciando per un momento il particolare tipo di modello che va applicato agli elettroni liberi per spiegare tale effetto, la presenza degli elettroni che schermano la carica a distanze inferiori del raggio atomico comporta nel caso dell'atomo di ^7Be immerso in ambiente metallico che l'energia potenziale di un elettrone orbitale nel campo del nucleo di ^7Be schermato si riduca di una quantità che possiamo stimare come:

$$U_e = -1 \times 4 \times 300 \text{ eV} = -1.2 \text{ keV}$$

Gli elettroni orbitali che vengono catturati dal nucleo di ^7Be hanno quindi una energia inferiore rispetto al caso non schermato di 1.2 keV. La probabilità di cattura, come si vede dalla (4.4), scala con il quadrato dell'energia totale della transizione $W + W_0$, dove W è l'energia dell'elettrone e W_0 è il Q-valore pari a 862 keV. Il fattore di riduzione della probabilità di decadimento risulta quindi:

$$\left(\frac{862 - 1.2}{862}\right)^2 = 99.7\% \quad (4.43)$$

ossia l'ordine di grandezza della variazione della vita media è dello 0.3 %. In particolare, facendo questo calcolo per il Pd, il cui tempo di dimezzamento è stato determinato con precisione dalle due misure indipendenti dei laboratori di Napoli e Debrecen §3.4, la variazione risulta dello 0.8%. Questo valore è consistente entro 2σ con le misure di vita media, sebbene per un confronto più diretto bisognerebbe rapportare il tempo di dimezzamento del ^7Be nel Pd a quello in un isolante.

Possiamo infine concludere che il potenziale di *screening* misurato dalle misure d+d in ambiente metallico è consistente con le misure della vita media del ^7Be *solo se* gli elettroni liberi che schermano la carica nucleare di ^7Be non vengono catturati dal nucleo. Infatti, abbiamo visto nello studio dei modelli utilizzati per trattare gli elettroni liberi nei metalli che la cattura di tali elettroni (λ_{free}) comporterebbe, nel caso del modello di Debye, variazioni della vita media dell'ordine del 50% e nel caso

di Thomas-Fermi variazioni dell'ordine di qualche %⁴. Le conclusioni cui possiamo pervenire in seguito a questo studio sono:

- La cattura elettronica del ^7Be non è influenzata dalla presenza degli elettroni liberi nei metalli entro lo 0.4%. La cattura degli elettroni liberi non è consistente con i risultati sperimentali né nel modello dello *screening* di Debye/Drude, né nel modello di Thomas-Fermi.
- Il modello di Debye/Drude spiega efficacemente una gran quantità di dati sperimentali, come l'*electron screening* misurato in varie reazioni nucleari indotte in ambiente metallico, la dipendenza del raggio di *screening* dalla temperatura ed, infine, i risultati della vita media del ^7Be nei metalli, una volta escluso che gli elettroni liberi possano partecipare al decadimento del ^7Be . Esso, tuttavia, si basa sull'assunzione che gli elettroni siano descrivibili come un gas di particelle classiche che seguono la statistica di Boltzmann. Tale modello si scontra tuttavia con la natura intimamente quantistica degli elettroni liberi nei metalli.

Guardando alle prospettive sperimentali di tale studio, un'indagine che può identificare il corretto modello di *screening* da applicare agli elettroni liberi nei metalli è costituito dall'analisi in temperatura del decadimento del ^7Be impiantato. Infatti, se il potenziale dello *screening* nel modello di Debye scala con la temperatura come $1/\sqrt{T}$, allora U_e , alla temperatura di 4 K ⁵ in base alla (4.1), dovrebbe essere pari a $\sqrt{293/4} \times 1.2 \text{ keV} = 10.3 \text{ keV}$. La variazione del tempo di dimezzamento corrisponde all'2.4%. L'effetto della temperatura può essere rapidamente evidenziato, misurando la variazione del tasso di conteggio del γ nel decadimento alle due temperature. Tale misura è attualmente in corso di allestimento.

Vogliamo sottolineare, infine, che l'effetto dello *screening* degli elettroni liberi nei metalli può essere messo in evidenza anche in altri tipi di decadimento, per esempio negli elementi α -emettitori. In base alla comprensione dell'effetto raggiunta finora, lo

⁴Si ricordi che questo risultato è solo un limite superiore perché l'effetto di schermatura da parte degli elettroni della shell L sulla cattura degli elettroni liberi non è stato considerato.

⁵Tale temperatura può sperimentalmente essere raggiunta utilizzando una criopompa.

screening dovrebbe tradursi in un meccanismo di accelerazione nelle reazioni indotte tra particelle cariche, come nel caso della $d+d$, e di decelerazione nel caso del decadimento per cattura elettronica, perché l'elettrone catturato ha una energia potenziale inferiore. Nel caso degli elementi che decadono α o e^+ , lo *screening* accelera le particelle e questo si dovrebbe tradurre in una diminuzione del tempo di dimezzamento dei radionuclidi incorporati in un ambiente metallico. Inoltre, lo *screening* dovrebbe comportare uno spostamento delle energie di risonanza in reazioni indotte in ambiente metallico pari alla quantità U_e . Sono ad oggi in corso vari esperimenti volti ad evidenziare questo tipo di effetti.

Conclusioni

Questo lavoro di tesi è stato mirato a studiare due aspetti della impiantazione ionica legati alle interazioni tra variabili elettroniche e nucleari, cioè i processi di danneggiamento di semiconduttori mediante impiantazione ionica, legati al contributo nucleare della perdita di energia degli ioni nella materia, e l'influenza dell'ambiente elettronico su fenomeni nucleari.

Nel primo caso è stato utilizzato un metodo basato su un dispositivo elettronico che permette, mediante misure elettriche, di risalire al profilo e alle caratteristiche del danneggiamento prodotto dall'impiantazione. Il confronto del profilo così determinato con i risultati di un calcolo microscopico mostra un buon accordo per quanto riguarda l'andamento in funzione della profondità, il che conferma la validità della parametrizzazione dei potenziali di *screening* utilizzati nel calcolo della perdita di energia nucleare, almeno per quanto riguarda la dipendenza dall'energia di interazione. Sulla base di questo risultato è stato possibile, in collaborazione con la International Rectifier Italia, progettare una procedura di impiantazione per diodi di potenza che ha dato ottimi risultati per quanto riguarda la riduzione dei tempi di commutazione. Come naturale proseguimento di questo lavoro, va analizzata in dettaglio la relazione tra le curve di danneggiamento e i parametri dei potenziali di *screening*, anche considerando i risultati dell'impiantazione di specie ioniche differenti che forniranno le basi sperimentali per determinare la dipendenza dalla carica e la massa dello ione incidente.

Per quanto riguarda il secondo aspetto, per la prima volta è stato possibile studiare il decadimento radioattivo del ^7Be in matrici metalliche utilizzando per l'impiantazione

un fascio puro di ^7Be in modo da preservare la struttura e la composizione stechiometrica del materiale ospite. I risultati ottenuti sono consistenti con il modello di Drude-Debye utilizzato per spiegare l'anomalo potenziale di *screening* osservato in reazioni di fusione a bassa energia, con le ipotesi supplementari che le funzioni d'onda atomiche del ^7Be non siano perturbate dagli elettroni liberi e che questi ultimi non contribuiscano significativamente alla probabilità di decadimento. Per altro, i risultati ottenuti applicando il modello a gas di Fermi agli elettroni liberi del metallo non sono incompatibili con questi risultati. Una risposta definitiva alla questione potrà essere data studiando la dipendenza dalla temperatura della vita media del decadimento, che permetterà di discriminare tra questi due modelli. Una tale misura è in programma e i primi risultati sono attesi nel corso del 2006.

Appendice A

Vogliamo qui riportare i dettagli del calcolo della posizione all'interno del dispositivo di test utilizzato per la misura del *lifetime* e la relativa espressione della $\tau(X_c)$, in condizioni di alti livelli di iniezione. Si rimanda alla [10] per una trattazione completa anche a bassi livelli di iniezione. Mettendo insieme la (2.8) e la (2.10), si ottiene l'espressione:

$$I_{epi} = qAp_0 \int_0^W \left[1 - \frac{x}{x_c} \left(1 + \frac{1}{2P_0} \right) - \frac{1}{2P_0} \ln \frac{p}{p_0} \right] \frac{1}{\tau(x)} dx \quad (4.44)$$

Il rapporto tra le componenti alternate della corrente del diodo superficiale e della tensione di substrato è:

$$\frac{i_d}{v_s} = \frac{dI_{epi}}{dx_c} \frac{dx_c}{dV_s} = \frac{dx_c}{dV_s} qAp_0 \int_0^W \left[\frac{x}{x_c^2} \left(1 + \frac{1}{2P_0} \right) - \frac{1}{2P} \frac{d}{dx_c} \left(\frac{p}{p_0} \right) \right] \frac{1}{\tau(x)} dx \quad (4.45)$$

dove $P = p/N_d$. Dalla (2.9), si ottiene inoltre:

$$\frac{dx_c}{dV_s} = \frac{dx_c}{dI_s} \frac{I_s}{dV_s} = - \frac{x_c}{I_s} \frac{i_s}{v_s} \quad (4.46)$$

Dalle ultime due relazioni, si ricava il rapporto tra le componenti alternate:

$$\frac{i_d}{i_s} = - \frac{1}{D_n^*} \int_0^W \left[x \left(1 + \frac{1}{2P_0} \right) \frac{2P}{1+2P} \right] \frac{1}{\tau(x)} dx \quad (4.47)$$

dove $D_n^* = D_n(2 + 1/P_0)$. La derivata di quest'ultima rispetto a x_c risulta:

$$\frac{d}{dx_c} \left(\frac{i_d}{i_s} \right) = \frac{x_c}{D_n^*} \int_0^W \frac{x^2}{x_c^3} \left(1 + \frac{1}{2P_0} \right)^2 \frac{4PP_0}{(2P+1)^3} \frac{1}{\tau(x)} dx \quad (4.48)$$

L'espressione che compare tra parentesi quadre può essere considerata una funzione peso dell'inverso del *lifetime* del tipo $f(P_0, x)$. Tale funzione è riportata in figura

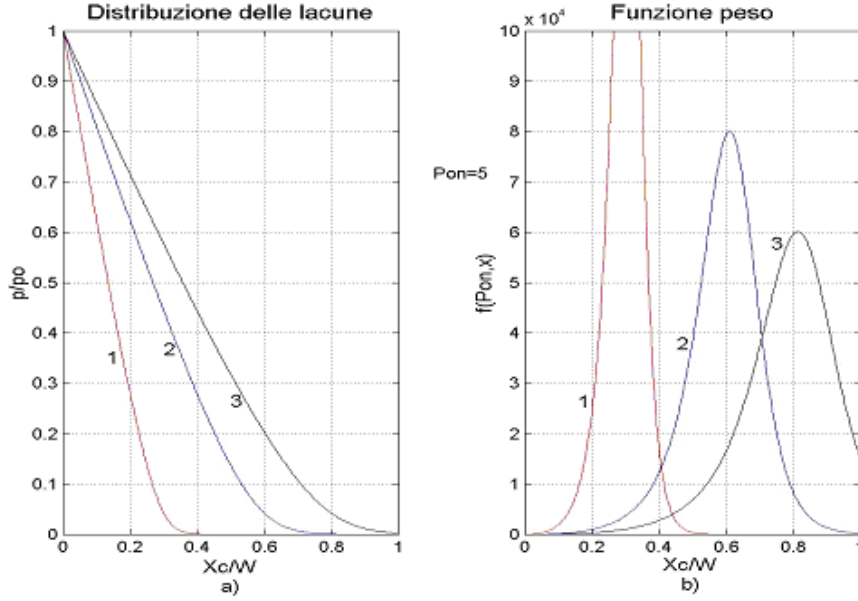


Figura 4.8: Sono plottate in (a) le distribuzioni delle lacune iniettate per un livello di iniezione normalizzato pari a 5 con differenti tensioni di controllo V_s e in (b) le relative funzioni peso.

(4.8) per un livello di iniezione $P_0=5$. L'area non dipende da x_c , e quindi da V_s , ma solo dal livello di iniezione. Man mano che tale livello cresce la funzione diventa sempre più piccata intorno a x_c , mentre al diminuire dell'iniezione l'area tende a 2 e il massimo è in $2x_c$.

L'espressione generale dell'area della funzione peso è:

$$F(P_0) = \int_0^\infty f(P_0, x) dx = 2 \frac{1 + P_0}{1 + 2P_0} \quad (4.49)$$

e l'ascissa alla quale si localizza il massimo della funzione peso è:

$$X_c = x_c F(P_0) = x_c 2 \frac{1 + P_0}{1 + 2P_0} \quad (4.50)$$

Indicando con $F(P_0)$ l'integrale della (4.48), si ottiene:

$$\frac{d}{dx_c} \left(\frac{i_d}{i_s} \right) = \frac{x_c F(P_0)}{D_n^*} \frac{1}{\tau(X_c)} \quad (4.51)$$

Dalla (4.51) e richiamando la (4.50), si ottiene, infine:

$$\tau(X_c) = \frac{X_c}{D_n^*} \frac{1}{\frac{d}{dx_c} \left(\frac{i_d}{i_s} \right)} \quad (4.52)$$

Nel calcolo della espressione della τ , vanno trattati separatamente i due opposti regimi di alti e bassi livelli di iniezione. L'attenzione sarà rivolta sugli alti livelli di iniezione, perché tutte le misure riportate in seguito sono state realizzate in tale regime. Si rimanda al lavoro [10] per una trattazione più completa del dispositivo.

In condizioni di alte iniezioni, la regione di plasma di ampiezza X_c offre una resistenza pressoché nulla, per cui la resistenza del diodo verticale è data dallo strato epitassiale svuotato di portatori minoritari:

$$R = \frac{V_s}{I_s} = \frac{1}{q\mu_n N_d} \frac{W - X_c}{A} \quad (4.53)$$

dove q è la carica dell'elettrone e μ_n la sua mobilità. L'area del dispositivo:

$$A = \frac{W - X_c}{q\mu_n N_d} \frac{I_s}{V_s} \quad (4.54)$$

si può sostituire nell'espressione generale dell'ascissa (2.9) e si ottiene che il massimo della funzione peso si localizza all'ascissa:

$$X_{CH} = W \frac{2(1 + P_0)}{V_s/V_t + 2(1 + 2P_0)} \quad (4.55)$$

Per $P_0 \gg 1$ e posto $V_s/V_t \gg P_0$, si ottiene l'espressione semplificata:

$$x_{CH} = \frac{X_c}{F_0} = 2W \frac{V_t}{V_s} P_0 \quad (4.56)$$

Il lifetime di ricombinazione risulta, infine, per alti livelli di iniezione:

$$\tau_H(X_c) = \frac{X_c}{D_n \left(2 + \frac{1}{P_0} \right)} \left[\frac{d}{dx} \left(\frac{dI_d}{dI_s} \right)^{-1} \right] = \frac{x_c}{2D_n} \left[\frac{d}{dx_c} \left(\frac{dI_d}{dI_s} \right)^{-1} \right] \quad (4.57)$$

Questa è l'espressione che useremo per il calcolo della τ , insieme alla (4.56) per il calcolo della profondità alla quale tale valore del *lifetime* si riferisce.

Bibliografia

- [1] J. F. Ziegler “Handbook of ION IMPLANTATION TECHNOLOGY” Ed. North Holland 1992
- [2] J. Lindhard et al. Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **28** (1954) No.8
- [3] P. Hazdra et al. Nucl. Instr. Meth. B **230** (2005) 225
- [4] J. F. Ziegler J. Appl. Phys. **85** No. 3 (1999) 1249
- [5] B.G. Svensson Nucl. Instr. and Meth. B **106** (1995) 183
- [6] P. Pellegrino - Tesi di Dottorato Kungl Tekniska Högskolan - Royal Institute of Technology - Stockholm 2001
- [7] D.K. Schroder “Semiconductor Material and Device Characterization” Ed. John Wiley and Sons, 1990
- [8] P. Spirito, G. Cocorullo IEEE Tras. Elec. Dev. **32** No. 9 (1985) 1708
- [9] J. F. Ziegler <http://www.srim.org>
- [10] A. Sanseverino - Tesi di Dottorato in Ingegneria Elettronica ed Informatica (1995)- Università di Napoli Federico II
- [11] D. C. Schmidt et al. Appl. Phys. A **65** (1997) 403
- [12] P. Spirito et al. IEEE Elec. Dev. Lett. **25** No. 9 (2004) 602

- [13] L. Bellemo et al. Vacuum **78** (2005) 623
- [14] P. Hazdra et al. Microel. J. **35** (2005) 249
- [15] P. Hazdra et al. Nucl. Instr. Meth. B **159** (1999) 207
- [16] M. Deicher et al. and ISOLDE Collaboration Hyperf. Inter. **151/152** (2003) 105
- [17] L. Gialanella et al. Nucl. Instr. Meth. B **197** (2002) 150
- [18] G. Dearnaley, J. H. Freeman, R. S. Nelson e J. Stephen “Ion implantation” Ed. North-Holland Publishing Company 1973
- [19] ATLAS User Manual, Santa Clara, CA: Silvaco International, 1998
- [20] R. W. Kavanagh, Nucl. Phys. **15** (1960) 411
- [21] B. N. Limata EpJ *in press*
- [22] U.S. EPA, 1991b
- [23] L. Gialanella et al. Eur. Phys. J. A **7** (2000) 303
- [24] L. Campajola et al. Nucl. Instr. Meth. B **140** (1998) 258
- [25] National Institute of Standards and Technology web site:
www.tf.nist.gov/service/its.htm
- [26] E. J. Konopinski “The theory of beta radioactivity” Ed. Oxford University press 1966
- [27] F. Raiola et al. Eur. Phys. J. A **19** (2004) 283
- [28] F. Raiola et al. Nucl. Phys. A **719** (2003) 37c
- [29] F. Raiola et al. J. Phys. G **31** (2005) 1141

- [30] F. Raiola et al. Eur. Phys. J. A **13** 377
- [31] M.M. Bé et al, Table of Radionuclide (comments on evaluation), Monographie BIPM-5 (2004) Bureau International des poids et des mesures.
- [32] T. Ohtsuki et al., Phys. Rev. Lett. **93**, (2004) 112501.
- [33] A. Ray et al., Phys. Lett. B **455**, (1999) 69.
- [34] S.H. Zhou et al., Chin. Phys. Lett. **22** No.3, (2005) 565.
- [35] Z.Y. Liu et al., Chin. Phys. Lett. **20** No.6, (2003) 829.
- [36] F. Lagoutine et al., Intern. Jour. Appl. Rad. Isot. **26**, (1975) 131.
- [37] E. B. Norman et al., Phys. Lett. B **519**, (2001) 15.
- [38] Zs.Fülöp et al., Nucl. Phys. A **758**, (2005) 697c.
- [39] C. E. Rolfs and W. S. Rodney “Cauldrons in the Cosmos” Ed. University of Chicago Press - Chicago 1988
- [40] U. Greife et al. Z. Phys. A **351** (1995) 107
- [41] J. N. Bahcall Phys. Rev. **129** (1963) 2683
- [42] J. N. Bahcall Phys. Rev. **126** (1962) 1143
- [43] J. N. Bahcall Phys. Rev. **128** (1962) 1297
- [44] A. V. Gruzinov, J. N. Bahcall Astroph. J. **126** (1997) 437
- [45] W. Bambynek et al. Rev. Mod. Phys. **49** (1977) 77
- [46] J. N. Bahcall, C. P. Moeller Astrop. J. **155** (1969) 511
- [47] I. Iben et al. Astroph. J. **150** (1967) 1001
- [48] J. Cruz et al. Phys. Lett. B **624** (2005) 181

Ringraziamenti

Questo lavoro è stato per me una elaborazione di esperienze apparentemente molto diverse tra loro e dalla mia precedente formazione nell'ambito della tesi di laurea. Sono stata una neofita in quasi tutto quello che ho fatto e, se qualcosa di positivo è stato prodotto, lo devo a tutte le persone che hanno contribuito a questo studio, sia partecipando direttamente alle ricerche, sia attraverso proficue discussioni su argomenti per me completamente nuovi.

Il mio primo ringraziamento va al mondo degli ingegneri che ho “dovuto” frequentare durante questi tre anni, a cominciare dal Prof. S. D'Aliento che mi ha introdotto all'elettronica e dall'Ing. L. Mele, perfetto compagno di viaggio (come dimenticare la profonda Polonia di ION2004!) e di lavoro, senza il quale la mia esperienza “ingegneristica” sarebbe stata molto più complicata e noiosa. Ringrazio, poi, l'Ing. M. Ferrara per le misure SRP e le misure I-V dei dispositivi impiantati e il Dr H. Neitzert con il quale si sta consolidando una attiva collaborazione.

I miei sinceri ringraziamenti vanno allo staff del DTL della Università della Ruhr, che ha sempre prontamente realizzato le impiantazioni dei dispositivi di test con He, al Dr H.W. Becker per la sua preziosa guida per l'analisi RBS dei dispositivi, ai Dr F. Raiola e A. Di Leva per l'attenta lettura del mio studio sull'interpretazione dei risultati di *electron screening* e le proficue discussioni.

Un ringraziamento particolare va al Prof. C. Rolfs con il quale ho avuto il privilegio di lavorare (giorno e notte) in “cantina” e che mi ha fatto appassionare al suo lavoro. Ringrazio il gruppo di Debrecen che ha realizzato presso l'ATOMKI il ^7Be utilizzato

in questo lavoro e che ha partecipato allo studio sulla vita media nei metalli. In particolare, voglio ricordare i Dr Zs Fülöp e E. Somorjai per le discussioni dei risultati sulla vita media del ^7Be .

Un sincero ringraziamento a tutto il gruppo di Napoli e di Caserta, i quali mi hanno supportato finanziariamente, lavorativamente e moralmente tutte le volte che si è presentata la necessità. In particolare, vorrei ringraziare il Dr D. Rogalla per il lavoro svolto insieme al CIRCE di Caserta ed il Prof. A. D'Onofrio per la sua disponibilità e per le meravigliose “donofriate”. Ringrazio il Dr G. Imbriani per il lavoro svolto insieme e per i suoi buoni consigli che ho, ovviamente, sempre disatteso, a causa del mio caratteraccio! Ringrazio poi M. Borriello, tra le poche persone davvero indispensabili in laboratorio, per l'aiuto nella realizzazione della linea di fascio del Tandem del DSF. Un ringraziamento affettuoso a G. Celentano che ha aiutato ben oltre il dovuto me ed i dottorandi di ogni ciclo a non soccombere dinnanzi alla burocrazia del Dottorato. Non posso poi non ringraziare di cuore il Dr G. Venoso per le pause “cucciolone” e per tutte le volte diviso il suo pranzo con me.

Un ringraziamento particolare va al Prof. M. Vigilante che con la sua discreta attenzione è sempre riuscito a prevenire le difficoltà finanziarie di una dottoranda, cui dovevano arrivare tante borse (*in primis* quella della Comunità Europea) che non sono mai arrivate.

Vorrei, inoltre, ringraziare coloro che mi hanno “iniziato” alla fisica sperimentale, vale a dire, in ordine cronologico, il Prof. V. Roca che mi ha introdotta alla vita da laboratorio (forse non dovrei ringraziarlo!) ed il Prof. F. Terrasi al quale va tutta la mia stima e che reputo uno dei pochi veri Fisici, nel senso più alto della parola.

Ed in ultimo, va la mia sincera gratitudine alle persone che più mi hanno guidato in questi tre anni di lavoro. Mi riferisco al Prof. M. Romano che, dopo un inizio difficile, si è rivelato per me un punto di riferimento prezioso nel corso di questi anni e al Dr Lucio Gialanella, che con il suo sfrontato ottimismo è riuscito (?) a fronteggiare il mio innato “scetticismo”. E', in buona parte, merito suo se sono arrivata alla fine di questo percorso.